

Einfluss der Wechselwirkungsgeometrie auf die nichtlineare Optik in atomaren und molekularen Gasen

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät der Friedrich-Schiller-
Universität Jena

von Dipl.-Phys. Andreas Hoffmann

geboren am 16.08.1984 in Berlin

- Gutachter/in:
1. Prof. Dr. Christian Spielmann
Institut für Optik und Quantenelektronik
Friedrich-Schiller-Universität Jena
 2. Prof. Dr. Stefan Nolte
Institut für Angewandte Physik
Friedrich-Schiller-Universität Jena
 3. Prof. Dr. Uwe Morgner
Institut für Quantenoptik
Leibniz Universität Hannover

Datum der Disputation: 22. August 2017

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit Untersuchungen zur Wechselwirkungsgeometrie für nichtlineare Optik in gasförmigen Medien. Hauptaugenmerk liegt auf der Fragestellung, welche Geometrie für eine nichtlineare Wechselwirkung, z.B. spektrale Verbreiterung, stimulierte Raman-Streuung oder die Erzeugung von Hohen Harmonischen, am geeignetsten ist. Hierbei ist insbesondere das Skalierungsverhalten in Bezug auf Pulsenergie und Pulsspitzenleistung von Bedeutung. Die hier vorgestellten experimentellen Ergebnisse zielen insbesondere darauf ab, den Anwendungsbereich für nichtlineare Wechselwirkungen zu erweitern – entweder zu μJ -Pulsenergien für gepulste Laser hoher Durchschnittsleistung oder Multi-100mJ-Pulsenergien für niedrige Durchschnittsleistungen.

Im ersten Teil der Arbeit wird perturbative nichtlineare Optik untersucht. Dabei werden theoretische und experimentelle Ergebnisse zur spektralen Verbreiterung in gasgefüllten Hohlkernfasern als nichtlineares Medium mit hoher Wechselwirkungslänge vorgestellt. Verwendet man dabei ein molekulares Gas als nichtlineares Medium, so wird der spektrale Verbreiterungsmechanismus um stimulierte Raman-Streuung ergänzt. Die so erreichbare spektrale Verbreiterung und anschließende Komprimierbarkeit der ultrakurzen Laserpulse wurde für Schwefelhexafluorid für transiente stimulierte Raman-Streuung und impulsive Anregung untersucht. Dabei zeigt insbesondere die transiente Streuung eine gute Anwendbarkeit für Pulsformungsexperimente mit Hohen Harmonischen und erlaubt es zusätzlich die Laserparameter vor der nichtlinearen Wechselwirkung zu niedrigeren Pulsspitzenleistungen zu verschieben. Ebenso werden erste Experimente mit neuartigen anti-resonanten Hohlkernfasern vorgestellt, die es erlauben, die erforderliche Pulsspitzenleistung noch weiter abzusenken und spektrale Verbreiterung über mehrere optische Oktaven zu erzielen. Als zweite Geometrie hoher Wechselwirkungslänge wird stimulierte Raman-Streuung in der konischen Geometrie von Bessel-Strahlen untersucht. Neben theoretischen Überlegungen zur Dispersion werden ebenfalls Experimente mit Schwefelhexafluorid vorgestellt. Hierbei zeigt sich das Entstehen eines komprimierten Stokes-Strahls hoher räumlicher Qualität, welcher ideal für weitere Laseranwendungen geeignet ist.

Der zweite Teil der Arbeit beschäftigt sich mit nichtlinearer Optik jenseits der störungstheoretischen Beschreibung – der Erzeugung von Hohen Harmonischen. Neben theoretischen Überlegungen zur Fokusgeometrie und Phasenanpassung werden Experimente in Hohlkernfasern und mit freiem Fokus vorgestellt und bezüglich ihres Skalierungsverhaltens untersucht. Hierbei erlauben Hohlkernfasern die höchste Wechselwirkungslänge und die Möglichkeit das Spektrum der Harmonischen über spektrale Pulsformung gezielt zu beeinflussen und somit eine laserartige, durchstimbare, breitbandige XUV-Laborquelle bereitzustellen. Positiv wirkt sich dabei die Verwendung eines molekularen Gases zur spektralen Verbreiterung der erzeugenden Laserpulse aus, da so das XUV-Signal der Harmonischen absolut und die Wellenlängenselektivität gesteigert werden können. Mit dieser durchstimbaren XUV-Quelle wurde eine Detektionsmethode zur Messung der spektralen Güte der lasergenerierten Harmonischen entwickelt, welche auf Reflektivitätsmessungen mit Teilchendetektoren beruht und eine einfache Diagnosemöglichkeit für zeitaufgelöste Spektroskopie mit Hohen Harmonischen bietet.

Abstract

This thesis deals with investigation of the interaction geometry in gaseous nonlinear optics. In particular, which geometry is best suited for a nonlinear interaction, e.g. spectral broadening, stimulated Raman scattering or high-harmonic generation, and allows scalability to either higher or lower pulse energies from ultrafast lasers of either low or high average powers.

In the first part of this work perturbative nonlinear optics are investigated. Gas-filled hollow-core fibers are theoretically and experimentally studied as a nonlinear medium offering long interaction length. Using a molecular gas offers additional stimulated Raman scattering besides self-phase modulation. Here, sulfur hexafluoride is studied in transient scattering and impulsive excitation for spectral broadening and afterwards compression of the ultrashort laser pulses. In particular, transient scattering offers benefits for pulse-shaping experiments driving high-harmonic generation and allows scaling of this experimental scheme for lasers with lower peak powers. Further scaling can be achieved by usage of novel anti-resonant hollow core fibers that allow generation of a multi-octave spanning supercontinuum. As a second geometry offering a long nonlinear interaction, stimulated Raman scattering in sulfur hexafluoride is theoretically and experimentally studied in a Bessel beam geometry. The observed compressed Stokes beam with high spatial quality is ideally suited for further laser applications.

The second part of this work deals with nonlinear optics beyond the perturbative regime – high-harmonic generation. Besides theoretical investigations of focusing geometries and phase-matching, experiments with hollow-core fibers and free focusing geometry are presented and discussed in context of scalability. Here hollow-core fibers offer the longest interaction length and the possibility of shaping the harmonic spectrum via spectrally shaping the driving laser pulse to generate a laser-like, tunable, broadband XUV source in the lab. Further increase of the overall XUV signal and selection of single wavelength can be achieved using molecular gases for spectral broadening of the laser pulses. With this tunable XUV source, a detection method was developed for monitoring the laser generated harmonics by surface reflectivity measurements with particle detectors. This allows for easy judgement of the spectral quality of the harmonics in time-resolved spectroscopy.

Verwendete Naturkonstanten und Formelzeichen

Wegen der im Deutschen und Englischen unterschiedlichen Schreibung von Dezimalzahlen und der dadurch bedingten Fehlermöglichkeiten, wird in dieser Arbeit der englische Dezimalpunkt anstelle des deutschen Dezimalkommas verwendet.

Formelzeichen	Bezeichnung	Tabellenwert [1]
A	Einhüllende der elektrischen Feldstärke \vec{E}	
\vec{A}	Vektorpotential	
α	Polarisierbarkeit eines Atoms/Moleküls	
B, \vec{B}	Magnetische Flussdichte	
c, c_0	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum	$299792458 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$
D, \vec{D}	Elektrische Flussdichte	
e	Elementarladung	$1.602176462(63) \cdot 10^{-19} \text{ C}$
E, \vec{E}	Elektrische Feldstärke	
ϵ_0	Elektrische Konstante $1/\mu_0 c_0^2$	$8.854187817 \dots \cdot 10^{-12} \text{ F} \cdot \text{m}^{-1}$
H, \vec{H}	Magnetische Feldstärke	
\hbar	reduziertes Planck'sches Wirkungsquantum	$1.054571596(82) \cdot 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$
I	Intensität	
I_p	Ionisationspotential	
\vec{j}	Stromdichte	
J, \vec{J}	Magnetische Polarisation	
k, \vec{k}	Wellenzahl, Wellenzahlvektor	
k'	Inverse Gruppengeschwindigkeit	
k''	Gruppengeschwindigkeitsdispersion	
m_e	Masse des Elektrons	$9.10938188(72) \cdot 10^{-31} \text{ kg}$
μ_0	Magnetische Konstante	$4\pi \cdot 10^{-7} \text{ N} \cdot \text{A}^{-2}$
$\vec{\mu}$	Dipolmoment	
n	Brechungsindex	
n_2	Kerr-Koeffizient des intensitätsabhängigen Brechungsindex	
N	Teilchenzahldichte	
N_A	Avogadro-Konstante	$6.02214199(74) \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
N_a	Dichte neutraler Atome	
N_e	Dichte freier Elektronen	
p	Druck	
P, \vec{P}	Elektrische Polarisation	
p_{ion}	Ionisationswahrscheinlichkeit	

$q(z)$	Komplexer Strahlparameter	
r_e	Klassischer Elektronenradius	$2.817940285(31) \cdot 10^{-15} \text{ m}$
U_p	Ponderomotives Potential	
T_1	Raman-Schwingungsdauer $1/\Omega_{\text{Raman}}$	
T_2	Abklingzeit der Raman-Schwingung	
w	Strahlradius	
ω	Kreisfrequenz	
χ	Elektrische Suszeptibilität	

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	iii
Abstract	iv
Verwendete Naturkonstanten und Formelzeichen	v
1. Einleitung.....	3
2. Ultrakurze Laserpulse in transparenten Medien	6
2.1 Räumliche Beschreibung von Laserstrahlen	6
2.2 Zeitliche Beschreibung von ultrakurzen Laserpulsen.....	8
2.3 Pulsdauerbestimmung von ultrakurzen Laserpulsen	9
3. Perturbative nichtlineare Optik	14
3.1 Mikroskopische und makroskopische Beschreibung.....	14
3.2 Raman-Streuung	15
3.2.1 Klassische Beschreibung des Raman-Effekts	16
3.2.2 Nichtlineare Raman-Streuung.....	17
3.2.3 Schwefelhexafluorid	18
3.3 Propagation von ultrakurzen Laserpulsen durch optische Fasern	19
3.3.1 Lösung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung	19
3.3.2 Hohlkernfasern.....	21
3.4 Stimulierte Raman-Streuung in Hohlkernfasern	23
3.4.1 Experimente bei 800 nm Wellenlänge	24
3.4.2 Laserpulsformung in einem Prismenkompressor.....	28
3.4.3 Entwicklung eines Autokorrelators für breitbandiges Licht.....	29
3.4.4 Experimente bei 400 nm Wellenlänge	30
3.4.5 Ultrakurze Laserpulse für ophthalmologische Untersuchung.....	31
3.4.6 Spektrale Verbreiterung in antiresonanten Hohlkernfasern.....	33
3.4.7 Skalierung für Scheiben- und Faserlaser	37
3.5 Stimulierte Raman-Streuung in konischer Geometrie	37
3.5.1 Mathematische Beschreibung von Bessel-Strahlen	38
3.5.2 Erzeugung eines ultrakurzen Bessel-Strahls durch ein Axicon ...	39
3.5.3 Axiales Intensitätsprofil	40
3.5.4 Phasenanpassung.....	41
3.5.5 Verstärkung von Stokes-Strahlen	43
3.5.6 Seed-Strahl für Laser-Plasma-Verstärker	46
4. Extreme nichtlineare Optik	48
4.1 Erzeugung von Hohen Harmonischen	48
4.1.1 Mikroskopische Beschreibung	49
4.1.2 Phasenanpassung.....	53

4.1.3	Kohärenzlänge und Absorption in Gasen.....	55
4.1.4	Methoden zur Steigerung des Harmonischen-Signals.....	58
4.1.5	Wechselwirkungsgeometrien für schwache Fokussierung.....	60
4.1.6	Hohe Harmonische an SF ₆	64
4.1.7	Steigerung der XUV-Signals durch modulierte Gasdichten	66
4.2	Spektral geformte XUV-Pulse	69
4.2.1	Spektrale Pulsformung in einer Hohlkernfaser	70
4.2.2	Modulation der Laserpulse	71
4.2.3	Optimierungsexperimente	72
4.3	Entwicklung eines XUV-Detektors.....	75
4.3.1	XUV-Reflektion von metallischen Oberflächen	75
4.3.2	Messungen mit geformten XUV-Pulsen	77
4.3.3	Anwendungen und Ausblick	80
5.	Zusammenfassung.....	82
6.	Literaturverzeichnis.....	84
7.	Publikationsliste	94
	Ehrenwörtliche Erklärung.....	97

1. Einleitung

Für die Untersuchung bisher unbeantworteter physikalischer Fragestellungen gibt es grundsätzlich drei verschiedene Herangehensweisen – Experimente, analytische Theorien und numerische Simulationen. Experimenteller Zugang zu neuen Einblicken in physikalische Prozesse wird erst dadurch ermöglicht, dass neue Quellen und geeignete Detektoren entwickelt werden. Die Entwicklung und Verbesserung von Quellen und Detektoren kann man hierbei durchaus als eigenständiges Arbeitsgebiet der Experimentalphysik auffassen. Schematisch ist diese Herangehensweise in Abb. 1 für den Fall der Laserspektroskopie dargestellt.

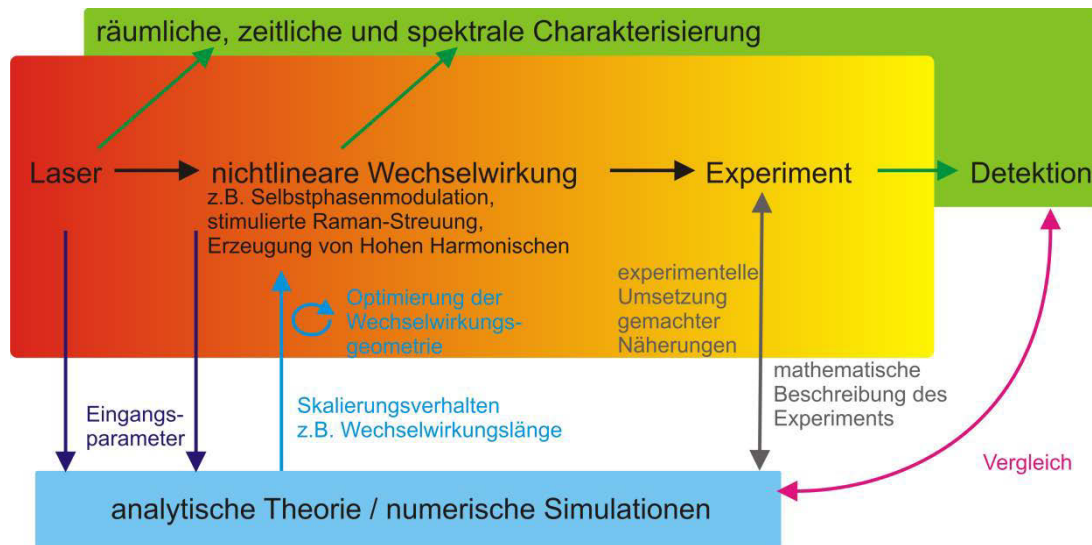


Abb. 1: Grundsätzliche Methoden zur Beantwortung physikalische Fragestellungen am Beispiel der Laserspektroskopie. Der Prozess von einer Quelle (Laser) zu einem Experiment ist rot bis gelb eingefärbt und enthält als optionale Zwischenstufen nichtlineare Wechselwirkungen, die auch als eigenständige Experimente aufgefasst werden können. Jeder experimentelle Schritt wird begleitet von Detektionsprozessen (grün). Die Ergebnisse der Messungen können dann als Eingangsparameter für Berechnungen und Simulationen (blau) benutzt werden. Mit ihnen ist es möglich die experimentellen Parameter, insbesondere die Wechselwirkungsgeometrie, zu optimieren.

Als herausragendes Beispiel für solch einen stetigen Entwicklungsprozess von Quellen und Detektoren kann der etwa 20-jährige Prozess zur Attosekundenspektroskopie aufgeführt werden. Von der Entdeckung Hoher Harmonischer [2, 3] über die Modellbildung [4-6] zur Vorhersage der Attosekundenzeitstruktur [7] bis zu ersten Experimenten [8] und der Etablierung als Instrument der Grundlagenforschung gab es einen stetigen Fortschritt im Bereich der Laserquellen, z.B. Kerr-Linsen-Modenkopplung [9], Chirped Pulse Amplification [10] und Carrier-Envelope-Phasen-Stabilisierung [11]; der Laserdiagnostik (FROG [12], SPIDER [13]) und komplett neue Verfahren für die Messung mit Attosekundenpulsen [14]. Auch in der hier vorliegenden Arbeit soll gezeigt werden, wie man durch die Modifikation von bekannten Verfahren neue Anwendungen erschließen kann und neue Quellen und Detektoren entwickelt. Schwerpunkt der Arbeit soll dabei sein, die zugrundeliegenden physikalischen Überlegungen ausführlicher aufzuzeigen als dies in Fachzeitschriftenartikeln möglich ist. Der überwiegende Teil der experimentellen Ergebnisse wurde in detaillierten open-access-Artikeln veröffentlicht (Kapitel 7), deren Inhalte in dieser Arbeit aufgegriffen und mit bisher unveröffentlichten Ergebnissen ergänzt werden.

Die Hauptfragestellung dieser Arbeit ist, wie man das Skalierungsverhalten nichtlinearer Optik in Gasen durch die Geometrie günstig beeinflussen kann, so dass sich der Anwendungsbereich für industrielle oder medizinische Anwendungen für Ultrakurzpulslaser niedriger Pulsspitzenleistung erweitern lässt. Andererseits bieten die Ultrakurzpulslaser der physikalischen Grundlagenforschung immer höhere Pulsspitzenleistungen, so dass auch eine Anpassung der nichtlinearen Wechselwirkung nötig wird. Hierbei bieten gasförmige nichtlineare Medien einfache und kostengünstige Skalierungsmöglichkeiten.

Um die nichtlineare Optik von gasförmigen Medien zu studieren, benötigt man ultrakurze Laserpulse. Kapitel 2 gibt eine kurze Einführung zur Beschreibung und Messung ultrakurzer Laserpulse.

Kapitel 3 beschäftigt sich mit perturbativer nichtlinearer Optik. Nach einer kurzen Einführung in die nichtlineare Wechselwirkung von Molekülen mit dem elektrischen Feld eines ultrakurzen Laserpulses werden Geometrien hoher Wechselwirkungslänge untersucht. Gasgefüllte Hohlkernfasern sind dabei ein etabliertes Werkzeug der Ultrakurzpulslaserphysik zur spektralen Verbreiterung und erlauben es, die nichtlineare Wechselwirkung atomarer und molekularer Gase zu vergleichen. Durch diese Vergleichsexperimente kann gezeigt werden, dass durch die Verwendung von molekularen Gasen die Anforderungen an die erforderliche Laserintensität sinken und somit eine Skalierung auf Yb-dotierte Ultrakurzpulsfaserlaser für industrielle oder medizinische Anwendungen möglich ist [15]. Dabei wird auch untersucht, inwiefern die spektral verbreiterten Laserpulse nachträglich wieder komprimiert werden können und Experimente für 800 nm und 400 nm Wellenlänge vorgestellt. Zur Charakterisierung der Pulsdauer bei 400 nm Wellenlänge wurde ein Autokorrelator entwickelt [16], der für Pulsdauerbestimmung im gesamten sichtbaren Spektralbereich geeignet ist. Die komprimierten Pulse können für ophthalmologische Untersuchungen als medizinische Anwendung verwendet werden, wobei einige Messungen für einfache Schichtsysteme vorgestellt [17] und Optimierungsansätze durch gasgefüllte Hohlkernfasern für verbesserte Messungen diskutiert werden. Hohe Verluste klassischer Hohlkernfasern bei Verkleinerung des Faserdurchmessers, welche die Skalierung für Yb-dotierte Ultrakurzpulslaser erschweren, können durch neuartige antiresonante Hohlkernfasern vermieden werden. Erste Untersuchungen zeigen eine spektrale Verbreiterung über mehrere optische Oktaven, welche für zahlreiche spektroskopische Anwendungen geeignet ist [18].

Als zweite Geometrie hoher Wechselwirkungslänge wird stimulierte Raman-Streuung in der konischen Geometrie eines Bessel-Strahls theoretisch und experimentell untersucht. Dabei beobachtet man das Entstehen einer axialen Stokes-Komponente, welche hervorragend geeignet für weitere Experimente ist, da sie mehrere Millijoule Pulsenergie enthalten kann, räumlich eine gaußsche Grundmode als Strahlprofil besitzt und bereits zeitlich komprimiert ist [19].

In Kapitel 4 wird nichtlineare Optik jenseits der störungstheoretischen Beschreibung anhand der Erzeugung von hohen Harmonischen untersucht. Nach einer Einführung in die physikalischen Grundlagen werden auch hier Experimente vorgestellt, die insbesondere in Hinsicht auf das Skalierungsverhalten interessant sind. Dafür werden als Wechselwirkungsgeometrie Hohlkernfaser und freier Fokus untersucht. Um schwache Fokussierung hochenergetischer Laserpulse bestmöglich zu nutzen, werden verschiedene Anordnungen der Gasdichte für die nichtlineare Wechselwirkung vorgestellt. Dies umfasst Nickelröhrchen, Überschalldüsen und Gaszellen sowie die Verwendung mehrerer

Wechselwirkungen nacheinander. Diese kaskadierte Erzeugung von Harmonischen ist Gegenstand aktueller theoretischer und experimenteller Forschung und die erreichten Ergebnisse [20, 21] werden hinsichtlich des Auftretens von parametrischer Verstärkung kritisch in das Forschungsfeld eingeordnet.

Neben einer hohen Wechselwirkungslänge bieten Hohlkernfasern für die Erzeugung Hoher Harmonischer die Möglichkeit die Form des XUV-Spektrums über spektrale Pulsformung des erzeugenden Laserpulses zu beeinflussen. Ausgehend von den Ergebnissen zur spektralen Verbreiterung in Hohlkernfasern werden Pulsformungsexperimente mit molekularen Medien gezeigt, wobei die Erzeugung von Hohen Harmonischen als phasensensitives Messverfahren für Laserpulse benutzt wird [22]. Schließlich wird ein neu entwickelter XUV-Detektor präsentiert, welcher es ermöglicht die spektrale Güte Hoher Harmonischer zu beurteilen [23].

Die Zusammenfassung der Arbeit erfolgt in Kapitel 5.

2. Ultrakurze Laserpulse in transparenten Medien

Um Vorgänge in der Natur zeitaufgelöst zu studieren, benötigt man eine Anregung und eine Abfrage, die im charakteristischen Zeitbereich des zu untersuchenden Prozesses liegen. Für die Untersuchung molekularer Rotationen und Schwingungen ist dies der Zeitbereich von Piko- und Femtosekunden. Diese Zeitskalen können durch modengekoppelte Laser im sichtbaren oder nahinfraroten Spektralbereich erreicht werden. Im Allgemeinen bezeichnet man dies als Spektroskopie mit ultrakurzen Laserpulsen.

Die Definition von „ultrakurz“ hat sich dabei mit der Zeit entwickelt und unterliegt aufgrund technologischen Fortschritts einem vorschreitenden Wandel. Neben modengekoppelten Laser und der Verstärkung der Laserpulse kommen seit der Jahrtausendwende weitere neue Aspekte hinzu, z.B. die Stabilisierung der Phase der Träger-Einhüllenden (*Carrier Envelope Phase*, CEP) [24], die Erzeugung von hochenergetischen Laserpulsen im mittleren Infrarotbereich über optisch-parametrische Verstärkung (Mid-IR-OPCPA, [25, 26]), und Dispersionsmanagement für Attosekundenphysik [27]. Besser als die eigentliche Laserpulsdauer zur Beschreibung „ultrakurz“ ist vielmehr das zugrundeliegende Beschreibungskonzept zur Einordnung geeignet, welches im nachfolgenden Abschnitt kurz dargestellt wird. Für eine übersichtlichere und detailliertere Einführung wird an dieser Stelle auf gängige Bücher zur Physik mit ultrakurzen Laserpulsen [28-31] bzw. allgemeinen Optik [32] verwiesen.

Die Maxwell-Gleichungen (1) beschreiben in der klassischen Physik die elektromagnetische Wechselwirkung in Materie.

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad \vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \quad (1)$$

Den Zusammenhang zwischen äußerem elektrischen Feld \vec{E} und magnetischem Feld \vec{H} und den in der Materie erzeugten elektrischen und magnetischen Dipolen beschreiben die Materialgleichungen (2), bei denen elektrische Polarisation $\vec{P}(\vec{E})$ und magnetische Polarisation $\vec{J}(\vec{H})$ das volumenbezogene Dipolmoment bezeichnen.

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}(\vec{E}) \quad \vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{J}(\vec{H}) \quad (2)$$

Für einen linearen Zusammenhang zwischen Polarisation und externen Feldern und fernab von Ladungen und Strömen ($\rho = 0, \vec{j} = 0$) ergibt sich eine Wellengleichung, deren mathematische Lösung unendlich ausgedehnte ebene, monochromatische Wellen sind. Physikalisch sind diese ebenen Wellen nicht möglich, da sie unendlich viel Energie enthalten würden. In der Realität sind Lichtstrahlen räumlich abgegrenzt und im Falle von ultrakurzen Laserpulsen polychromatisch. In den folgenden Abschnitten werden Näherungen vorgestellt, um das räumliche Profil und das zeitliche Verhalten eines ultrakurzen Laserpulses zu beschreiben und zu messen.

2.1 Räumliche Beschreibung von Laserstrahlen

Betrachtet man die homogene Wellengleichung (3) für die elektrische Feldstärke \vec{E} , erkennt man leicht, dass unendlich ausgedehnte ebene Wellen eine mathematische Lösung dieser Differentialgleichung sind.

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E}(x, y, z, t) = 0 \quad (3)$$

Ein Laserstrahl soll aber endlich ausgedehnt sein und sich in die z – Richtung ausbreiten:

$$\vec{E} = \frac{i}{2} E_0(x, y, z) \vec{e}^* \exp[-i(kz - \omega t)] + c.c. \quad (4)$$

Die Wellengleichung vereinfacht sich dann für den einhüllenden Ortsanteil $E_0(x, y, z)$:

$$\frac{\partial^2 E_0}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_0}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_0}{\partial z^2} - 2ik \frac{\partial E_0}{\partial z} = 0 \quad (5)$$

Eine weitere Vereinfachung ist möglich, wenn man annimmt, dass sich die Amplitude der Einhüllenden nur langsam ändert (*Slowly Varying Envelope Approximation*, SVEA).

$$\frac{\delta E_0}{\delta x}, \frac{\delta E_0}{\delta y}, \frac{\delta E_0}{\delta z} \ll \frac{E_0}{\lambda} \quad (6)$$

Somit kann man $\frac{\partial^2 E_0}{\partial z^2}$ vernachlässigen und erhält folgende Differentialgleichung:

$$\frac{\partial^2 E_0}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_0}{\partial y^2} - 2ik \frac{\partial E_0}{\partial z} = 0 \quad (7)$$

Eine Lösung ist der komplexe Ansatz:

$$E_0(x, y, z) = A(z) \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2q(z)}\right) \text{ mit } q(z) = z + iz_0 \quad (8)$$

Hierbei bezeichnet z_0 die Rayleigh-Länge. Für zylindersymmetrische Lösungen mit $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ erhält man für die Feldamplitude

$$E_0(\rho, z) = \frac{E_0}{\sqrt{1 + (z/z_0)^2}} \exp\left(-\frac{\rho^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(-\frac{ik\rho^2}{2R(z)}\right) \exp(i\phi(z)) \quad (9)$$

Diese Lösung wird als Gauß-Strahl bezeichnet und seine charakteristische Größe $q(z)$ komplexer Strahlparameter. Betrachtet man den inversen Strahlparameter, so kann man diesen geschickt in einen Anteil des Krümmungsradius $R(z)$ und Strahlradius $w(z)$ aufspalten.

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w(z)^2} \quad (10)$$

Anstelle des komplexen Strahlparameters $q(z)$ kann man alle Parameter auch in den direkt messbaren Größen Strahltaile w_0 oder Rayleigh-Länge z_0 und der Wellenlänge λ ausdrücken.

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z/z_0)^2} \quad R(z) = z \left(1 + (z/z_0)^2\right) \quad \phi(z) = -\arctan(z/z_0) \quad z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (11)$$

Der erste Faktor der Feldamplitude $E_0(\rho, z)$ bezeichnet die Energieerhaltung im Gauß-Strahl, der zweite Faktor das radiale Profil, der dritte Faktor beschreibt die Krümmung der

Wellenfront¹ und der letzte Faktor enthält die Gouy-Phase $\phi(z)$. Im Experiment misst man die Intensität, welche man aus dem Absolutquadrat der Feldamplitude $E_0(\rho, z)$ erhält:

$$I(\rho, z) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c |E_0(\rho, z)|^2 = I_0(z) \exp\left[-2(\rho/w)^2\right] = \frac{I_0}{1+(z/z_0)^2} \exp\left(-\frac{2\rho^2}{w_0^2(1+(z/z_0)^2)}\right). \quad (12)$$

Für einen Gauß-Strahl sind Strahlradius, Krümmung und Intensitätsverteilung in Abb. 2 graphisch dargestellt, wobei wurde die Normierung $z_0 = 1$ und $w_0 = 1$ verwendet wurde.

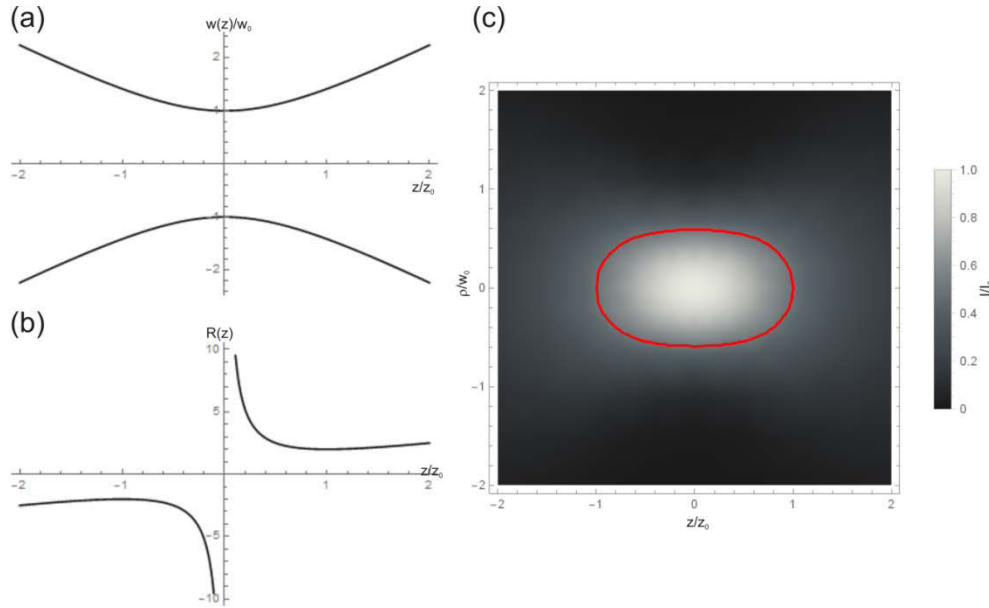


Abb. 2: Darstellung eines Gauß-Strahls mit Strahltaile w_0 normiert auf die Rayleigh-Länge z_0 . (a) zeigt den Strahlradius in Abhängigkeit von z . In (b) ist der Verlauf des Krümmungsradius dargestellt. Man erkennt für $z = 0$ eine Richtungsumkehr der Krümmung der Wellenfront des Gauß-Strahls. (c) zeigt das Intensitätsprofil für einen Gaußstrahl in Abhängigkeit von radialer und axialer Position. Die rote Kurve beschreibt den Bereich, an dem die Intensität auf die Hälfte der Maximalintensität abgefallen ist. In axialer Richtung entspricht dies der Rayleigh-Länge z_0 .

2.2 Zeitliche Beschreibung von ultrakurzen Laserpulsen

Eine einfache mathematische Beschreibung für einen ultrakurzen Laserpuls ist eine gaußsche Verteilung der elektrischen Feldstärke E_L im Zeitbereich am Ort $z = 0$:

$$E_L(z = 0, t) = E_0 \exp(-\Gamma t^2 + i\omega_L t) . \quad (13)$$

¹ Der Faktor $\exp\left(-\frac{ik\rho^2}{2R(z)}\right) = \exp\left(-\frac{i\pi\rho^2}{\lambda R(z)}\right)$ wird als Fresnel-Faktor bezeichnet, welcher im Fernfeld

gegen 1 geht. Der Exponent wird als Fresnel-Zahl $F = \frac{w^2}{\lambda z} = \pi \frac{z_0}{z}$ bezeichnet und findet Verwendung in der

Abgrenzung von Beugungsphänomenen ($F \ll 1$ Fraunhofer-Beugung, $F \approx 1$ Fresnel-Beugung, $F \gg 1$ geometrische Optik) und der Charakterisierung der TEM_{ij} -Moden in einem Resonator, wobei die Beugungsverluste von der Fresnel-Zahl abhängen.

Der Parameter $\Gamma = 2 \ln 2 \frac{1}{\tau^2}$ beschreibt dabei die Halbwertsbreite der Pulsdauer τ (*full width at half maximum*, FWHM). Durch Fourier-Transformation erhält man die spektrale Feldstärke \tilde{E} :

$$\tilde{E}(0, \omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_L(0, t) \exp(i\omega t) dt = E_0 \sqrt{\frac{\pi}{\Gamma}} \exp\left(\frac{-(\omega_L - \omega)^2}{4\Gamma}\right) = \tilde{E}_0(\omega) . \quad (14)$$

Nach Propagation der Länge z durch ein transparentes Medium ist die spektrale Feldstärke folgendermaßen modifiziert:

$$\tilde{E}(\omega, k) = \tilde{E}_0(\omega) \exp(-ik(\omega)z) \text{ mit } k(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c} . \quad (15)$$

Dabei wird die Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex $n(\omega)$ als Dispersion bezeichnet und $k(\omega)$ kann in eine Taylorreihe entwickelt werden:

$$k(\omega) = k_0(\omega_L) + k'(\omega - \omega_L) + \frac{1}{2} k''(\omega - \omega_L)^2 + \dots \text{ mit } k' = \left(\frac{dk(\omega)}{d\omega} \right)_{\omega_L} \text{ und } k'' = \left(\frac{d^2k(\omega)}{d\omega^2} \right)_{\omega_L} . \quad (16)$$

Eingesetzt in Gleichung (15) ergibt sich:

$$\tilde{E}(\omega, k) = \tilde{E}_0(\omega) \exp[-ik_0 z - ik'(\omega - \omega_L)z - \frac{1}{2} ik''(\omega - \omega_L)^2 z - \dots] . \quad (17)$$

Hierbei bezeichnet k' die inverse Gruppengeschwindigkeit und k'' die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD). Die GVD bewirkt, dass ein anfänglich bandbreitenbegrenzter Puls bei Propagation zeitlich zerläuft. Je kürzer ein Laserpuls ist bzw. je breiter sein Spektrum ist, desto höhere Ordnungen der Dispersion müssen bei der Taylor-Entwicklung berücksichtigt werden.

2.3 Pulsdauerbestimmung von ultrakurzen Laserpulsen

Zur Bestimmung der räumlichen Eigenschaften eines Laserstrahls, der Durchschnittsleistung, der Pulsenergie gepulster Laser und der spektralen und zeitlichen Eigenschaften gibt eine Vielzahl von Verfahren, für deren ausführliche Beschreibung auf gängige Literatur zur Laserphysik verwiesen wird [29, 33]. In diesem Abschnitt soll es zunächst nur um die Bestimmung der Pulsdauer ultrakurzer Laserpulse mit den in den nachfolgenden Experimenten verwendeten Techniken gehen. Das grundsätzliche Problem einer direkten Messung von Laserpulsen ist, dass Messgeräte zunächst nur empfindlich auf die Intensität des

Laserpulses $I = \frac{\epsilon_0 c E^2}{2}$ sind und elektronische Messgeräte, z.B. Dioden, typischerweise eine

Zeitauflösung im Nanosekundenbereich besitzen. Die Bestimmung der Pulsdauer eines ultrakurzen Laserpulses ist also durch eine direkte Messung nicht möglich. Das einfachste geeignete Verfahren ist eine Intensitätsautokorrelation (Abb. 3). Hierbei benutzt man einen Teil des zu charakterisierenden Laserpulses als Referenz, rastert ihn mit einer Replik zeitlich ab und erzeugt das Summenfrequenzsignal beider Pulse in einem nichtlinearen Kristall. Dabei ist die Geometrie beider Strahlen so gewählt, dass die Summenfrequenz räumlich von der Frequenzverdopplung² der einzelnen Laserstrahlen getrennt ist:

² Vgl. Abschnitt 3.1.

$$\begin{aligned}\frac{\vec{P}}{\varepsilon_0} &= \chi^{(1)} \cdot (\vec{E}(t) + \vec{E}(t-\tau)) + \chi^{(2)} \cdot (\vec{E}(t) + \vec{E}(t-\tau))^2 \\ &= \chi^{(1)} \vec{E}(t) + \chi^{(1)} \vec{E}(t-\tau) + \chi^{(2)} \vec{E}(t) \vec{E}(t) + \chi^{(2)} \vec{E}(t-\tau) \vec{E}(t-\tau) + \chi^{(2)} \vec{E}(t) \vec{E}(t-\tau)\end{aligned}\quad (18)$$

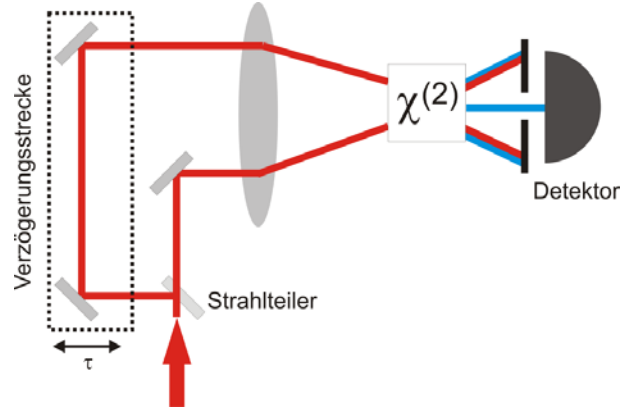


Abb. 3: Aufbau eines Intensitätsautokorrelators. Der zeitlich zu charakterisierende Laserpuls wird an einem Strahlteiler aufgespalten und ein Teil um die Zeit τ verzögert. Beide Laserpulse werden dann nichtkollinear in einem nichtlinearen Medium überlagert und die Intensitätsautokorrelation kann als Funktion der Verzögerungszeit bestimmt werden.

Das so gemessene Signal ist immer symmetrisch, auch wenn asymmetrische Eingangspulse vorliegen. Es besteht also eine Mehrdeutigkeit und auch die Phase des Laserpulses ist weiterhin unbekannt. Eine Möglichkeit der Erweiterung des Messverfahrens ist die Ersetzung der Fotodiode durch ein Spektrometer. Diese spektral aufgelöste Intensitätsautokorrelation bezeichnet man als FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*) [12]. Eine FROG-Spur ist dementsprechend eine Darstellung der Summenfrequenzerzeugung in der (ω, τ) -Ebene. Eine Projektion entlang der Frequenzachse ergibt dann wieder die Intensitätsautokorrelation. Amplitude und Phase des Laserfeldes $E_L(t)$ werden dann aus der FROG-Spur durch einen iterativen Algorithmus bestimmt. Bei der im Labor verwendeten Variante GRENOUILLE (*G*Rating-*E*liminated *N*o-nonsense *O*bservation of *U*ltrafast *I*ncident *L*aser *L*ight *E*-fields) [34] wird ein Fresnel-Biprisma verwendet, welches Strahlteiler und Verzögerungsstrecke ersetzt. Dann folgt ein dicker frequenzverdoppelnder Kristall, welcher als nichtlineares optisches Gatter und Spektrometer dient. Die spektrale Auflösung entsteht dadurch, dass das Ausgangssignal winkelaufgelöst gemessen wird. Mithilfe einer zylindrischen Linse wird eine SHG-FROG-Spur auf einer CCD-Kamera erzeugt (Abb. 4). Dann kann Amplitude und Phase des Laserfeldes $E_L(t)$ wieder über den FROG-Algorithmus bestimmt werden. Der Vorteil des GRENOUILLE ist, dass es ohne bewegliche Teile auskommt und somit unabhängig von der Pulswiederholrate des Lasers ist. Dies ermöglicht Einzelschussmessungen, aber auch Messungen mit kHz- und MHz-Systemen. Eine Beispielmessung ist für die Pulse eines Femtosekundenoszillators in Abb. 5 gezeigt.

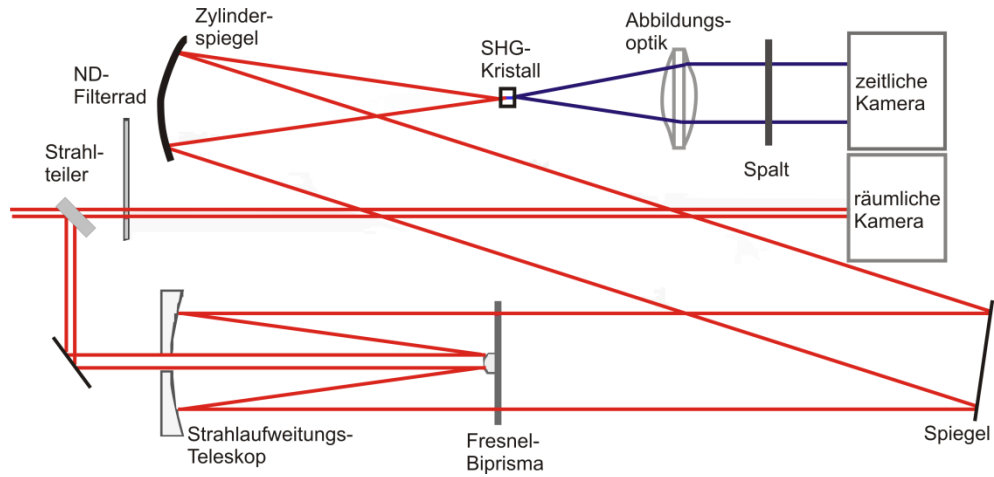


Abb. 4: Seitlicher Aufbau eines GRENOUILLE. Durch die Fokussierung mit einem zylindrischen Spiegel in den dicken SHG-Kristall wirkt dieser als Spektrometer. Die Winkelabhängigkeit wird auf die Kamera abgebildet und bestimmt die Frequenzachse (y-Achse der CCD)). Durch das Fresnel-Biprisma wird der Strahl in 2 Teilstrahlen aufgeteilt, welche sich im SHG-Kristall überlagern und die Pulsdauer kann als x-Koordinate auf die Kamera abgebildet werden.

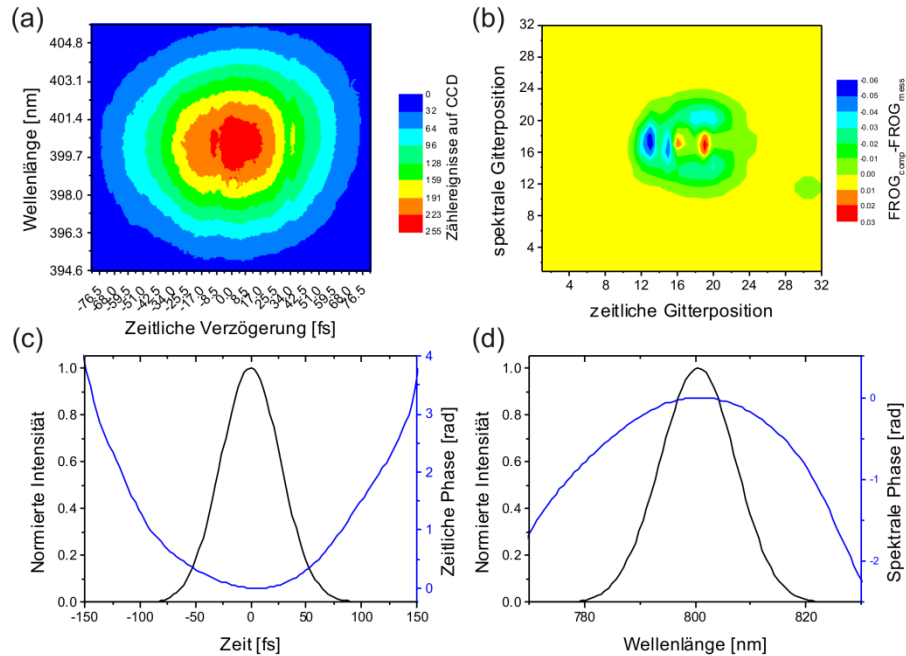


Abb. 5: GRENOUILLE-Messung eines Femtosekundenoszillators mit einer Pulsdauer von 60 fs (FWHM) und einer spektralen Breite von 16.7 nm (FWHM): (a) gemessene FROG-Spur, (b) Visualisierung des FROG-Fehlers als Differenz aus berechneter FROG-Spur und gemessener FROG-Spur. Die Abweichung beträgt 0.00778. (c) Rekonstruktion der zeitlichen Intensität und Phase, (d) Rekonstruktion der spektralen Intensität und Phase.

In Abb. 6 ist die zeitliche und spektrale Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse mit interferometrischer Autokorrelation und GRENOUILLE-Messung gezeigt. Dabei treten die spezifischen Eigenheiten des jeweiligen Messverfahrens hervor. Grundsätzlich stellt eine FROG- bzw. GRENOUILLE-Messung die genaueste Möglichkeit einen Laserpuls zeitlich und spektral zu charakterisieren dar. Vergleicht man die Resultate aus Abb. 5 mit Abb. 6(a)-(c), so ergibt sich gute Übereinstimmung der Autokorrelations- und GRENOUILLE-Messung. Aufgrund seines Aufbaus ohne bewegliche Bauteile ist jeder GRENOUILLE nur für Messungen in einem gewissen Zeitbereich geeignet und aufgrund der Materialdispersion der

verwendeten Optiken (Abb. 4) nicht für die Charakterisierung von Pulsdauern unter 20 fs tauglich.

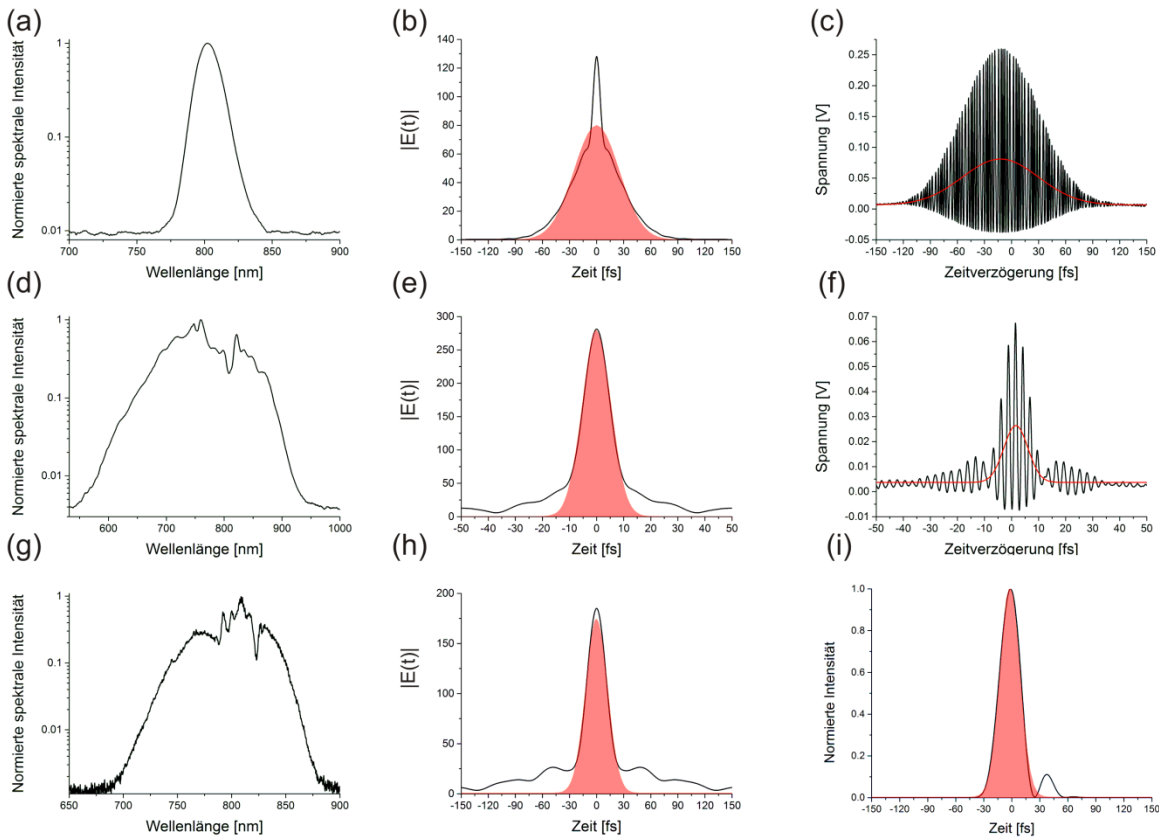


Abb. 6: Spektrale und zeitliche Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen. (a) zeigt das Spektrum eines Ultrakurzpulsoszillators in logarithmischer Darstellung. Durch Fourier-Transformation kann unter Annahme einer flachen spektralen Phase der Betrag der elektrischen Feldstärke zeitlich dargestellt werden (b) und eine gaußsche Kurvenanpassung (rot ausgefüllte Fläche) liefert eine transformationslimitierte Pulsdauer von 59 fs (FWHM). Durch Messung einer interferometrischen Autokorrelation (schwarze Linie in (c)) kann die Pulsdauer auf 55 fs (FWHM einer gaußschen Pulsform) bestimmt werden und zeitliche Mittelung liefert die Intensitätsautokorrelation (rote Linie in (c), 58 fs FWHM). Die Messung von kürzeren Pulsdauern als die transformationslimitierte Pulsdauer ist durch die geringe spektrale Breite und dadurch bedingte hohe relative Fehler erklärbar. (d) zeigt ein in einer Argon-gefüllten Hohlkernfaser verbreitertes Spektrum. Analog zu (b) wurde die transformationslimitierte Pulsdauer auf 10.4 fs bestimmt (e) und ausgeprägte Seitenflügel sind als Abweichung von der gaußschen Pulsform zu erkennen. Die Pulskompensation hinter der Faser erfolgte mit dispersionskompensierenden Spiegeln. Die Autokorrelationsmessung ist in (f) dargestellt und liefert 8.2 fs für die interferometrische Autokorrelation (schwarze Linie) und 7.4 fs für die Intensitätsautokorrelation (rote Linie). Beide Messungen unterschätzen die wirkliche Pulsdauer, da die gut sichtbaren Seitenflügel in der Autokorrelationsfunktion nicht berücksichtigt werden. (g) zeigt ein in einer SF_6 -gefüllten Hohlkernfaser verbreitertes Spektrum. Analog zu (b) wurde die transformationslimitierte Pulsdauer auf 25 fs bestimmt (h) und die Seitenflügel enthalten ein Nebenmaximum in Bereich ± 40 bis ± 55 fs. (i) zeigt die rekonstruierte Pulsform aus einer FROG-Messung. Das zeitliche Profil besteht aus einem Haupt- und einem Nebenpuls (schwarze Linie), welche etwa 40 fs voneinander getrennt sind. Dies entspricht etwa der Raman-Periode von 43 fs. Der Hauptpuls enthält etwa 94% der Energie und hat eine Pulsdauer von 26 fs (FWHM einer gaußschen Kurvenanpassung, rote Fläche).

Für Messungen kürzerer Pulsdauern kann ein für diesen Zweck optimierter interferometrischer Autokorrelator (FEMTOLASERS FEMTOMETER) verwendet werden. Eine solche Messung ist in Abb. 6(d)-(f) gezeigt, welche sich experimentell sehr gut eignet, um die Pulskompensation nach der spektralen Verbreiterung eines Laserpulses einzustellen.

Allerdings sind solche interferometrischen Autokorrelationen keine eindeutige Bestimmung der zeitlichen Pulsform eines Laserpulses. Tritt bei der spektralen Verbreiterung zusätzlich zur Selbstphasenmodulation auch transiente stimulierte Raman-Streuung auf, so erfährt auch der nachträglich komprimierte Laserpuls eine Signatur der Molekülschwingung. Dies ist in Abb. 6(g)-(i) dargestellt kann. Der rekonstruierte Laserpuls der GRENOUILLE-Messung enthält einen Nachpuls im Abstand der molekularen Schwingungsdauer.

3. Perturbative nichtlineare Optik

Von nichtlinearer Optik spricht man, wenn die Polarisation \vec{P} nicht länger linear vom elektrischen Feld \vec{E} abhängt und neue Frequenzen erzeugt werden. Dazu formt man die Maxwell-Gleichungen (1) im Medium unter den Annahmen $\rho = 0, \vec{j} = 0$ und $\mu = 1$ um und erhält:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad \vec{\nabla} \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \frac{\partial \vec{P}(\vec{E})}{\partial t} . \quad (19)$$

Daraus kann man dann die Wellengleichung im Material herleiten:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}(\vec{E})}{\partial t^2} , \quad (20)$$

welche einerseits die Lichtausbreitung im Vakuum und den Einfluss des Mediums mit der Polarisation \vec{P} beschreibt. Diese kann in einen linearen Anteil \vec{P}_L , welcher proportional zum elektrischen Feld \vec{E} ist und eine Änderung der Phasengeschwindigkeit c_{ph} bewirkt, und einen nichtlinearen Anteil \vec{P}_{NL} , welcher neue Frequenzen erzeugt, zerlegt werden. Somit lautet dann die Wellengleichung:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c_{ph}^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}(\vec{E})}{\partial t^2} . \quad (21)$$

Sie ermöglicht Phänomene wie Frequenzverdopplung, Selbstphasenmodulation, Selbstfokussierung und viele weitere. Für eine ausführliche Darstellung der Theorie und Beschreibungskonzepte sei auf umfangreiche Literatur zur nichtlinearen Optik verwiesen [32, 35-37].

In den ersten Abschnitten dieses Kapitels wird zunächst in Kurzform die nichtlineare Optik in Gasen und insbesondere Raman-Streuung am SF_6 -Molekül eingeführt. Anschließend wird die numerische Lösung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung vorgestellt, um die nichtlineare Wechselwirkung in gasgefüllten Hohlkernfasern zu beschreiben. Im vierten Abschnitt werden dann Experimente mit diesen Fasern für atomare und molekulare Gase präsentiert und auf ihr Skalierungsverhalten untersucht. Als zweite Geometrie hoher Wechselwirkungslänge werden im letzten Abschnitt Bessel-Strahlen vorgestellt. Zunächst wird dabei das räumliche und zeitliche Verhalten des Bessel-Strahls theoretisch diskutiert, dann Experimente zur stimulierten Raman-Streuung an SF_6 gezeigt und das Skalierungsverhalten untersucht.

3.1 Mikroskopische und makroskopische Beschreibung

Für ein lineares Medium besteht Proportionalität zwischen elektrischem Feld \vec{E} und Polarisation \vec{P} und beide besitzen die gleiche Frequenz:

$$\tilde{\vec{P}}(\omega) = \varepsilon_0 \chi_{ij} \tilde{\vec{E}}(\omega) = \varepsilon_0 (\varepsilon_r - 1) \tilde{\vec{E}}(\omega) . \quad (22)$$

Der Proportionalitätsfaktor setzt sich aus der Vakuumpermittivität ε_0 und dem Suszeptibilitätstensor χ_{ij} zusammen. Durch eine Hauptachsentransformation kann man dann den Brechungsindex des Medium n als makroskopische Größe bestimmen:

$$n_i = \sqrt{1 + \chi_{ii}} \quad \text{mit } i = x, y, z . \quad (23)$$

Dieses Beschreibungskonzept ist für Gläser und Kristalle gut geeignet. Hauptaugenmerk dieser Arbeit liegt aber in der optischen Beschreibung von Gasen. Somit benötigt man einen Zusammenhang zwischen den mikroskopischen Größen Dipolmoment $\vec{\mu}$ und Polarisierbarkeit α eines einzelnen Atoms oder Moleküls und den makroskopischen Größen Suszeptibilität χ , Polarisation \vec{P} und Brechungsindex n , welcher über die Clausius-Mossotti-Gleichung beschrieben wird. Dabei muss man in Abhängigkeit der Teilchenzahldichte N unterscheiden, ob sich die Dipole gegenseitig beeinflussen und es gilt:

$$\varepsilon_0 (\varepsilon_r - 1) = N\alpha \text{ für verdünnte Gase und} \quad (24)$$

$$\frac{3\varepsilon_0 (\varepsilon_r - 1)}{\varepsilon_r + 2} = N\alpha \text{ für dichte Medien.} \quad (25)$$

Neue Frequenzen können erzeugt werden, wenn die Polarisation \vec{P} nicht länger proportional zum äußeren elektrischen Feld \vec{E} ist:

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots \quad (26)$$

$$\frac{\vec{P}}{\varepsilon_0} = \chi^{(1)} \vec{E} + \left(\chi^{(2)} \vec{E} \right) \vec{E} + \left(\left(\chi^{(3)} \vec{E} \right) \vec{E} \right) \vec{E} + \dots \quad (27)$$

Hierbei sind die Suszeptibilitäten $\chi^{(n)}$ Tensoren $(n+1)$. Stufe, welche im Allgemeinen $3^{(n+1)}$ unabhängige Einträge besitzen. Damit die in Gleichung (27) in eine Taylor-Reihe entwickelte Polarisation \vec{P} auch konvergiert, muss $\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)} \vec{E} \gg \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E}$ gelten und man kann damit die Größenordnungen von $\chi^{(2)} \approx 10^{-10} \frac{\text{m}}{\text{V}}$ und $\chi^{(3)} \approx 10^{-17} \frac{\text{m}^2}{\text{V}^2}$ abschätzen. Aus Symmetriegründen treten $\chi^{(2)}$ und $\chi^{(3)}$ nie gleichzeitig in einem Material auf. Der Zusammenhang zwischen mikroskopischen und makroskopischen Größen ist dann symmetrie- und dichteabhängig und es sei hierfür auf Spezialliteratur verwiesen [32, 38]. Betrachtet man Medien mit Inversionssymmetrie tritt als erste Nichtlinearität $\chi^{(3)}$ auf. Für ein verlustfreies, isotropes Medium kann man dann den intensitätsabhängigen Brechungsindex $n(I)$ bestimmen.

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I \quad (28)$$

Hierbei bezeichnen n_0 den linearen Brechungsindex und $n_2 \propto \chi^{(3)}/n_0$ den nichtlinearen Koeffizienten bzw. nichtlinearen Brechungsindex. Eine zeitabhängige Zerlegung der Anteile von $\chi^{(3)}$ erfolgt in Abschnitt 3.3.

3.2 Raman-Streuung

Raman-Streuung wurde 1923 von A. Smekal vorhergesagt [39] und 1928 von C.V. Raman erstmal experimentell beobachtet [40, 41]. Da die Streuquerschnitte für Raman-Streuung sehr klein sind, benötigte man zur Beobachtung hohe Dichten molekularer Medien, z.B. in Kristallen. Durch die Verwendung von Lasern als Lichtquelle ist es heutzutage möglich auch Raman-Streuung an Molekülen in Gasen und Flüssigkeiten durchzuführen. Raman-Spektroskopie ist so zu einem unverzichtbaren Werkzeug in Physik, Chemie, Biologie und Medizin zur Untersuchung von Molekülen geworden. Für einen detaillierten Überblick über Techniken wie CARS (*Coherent anti-Stokes Raman Scattering*), SERS (*Surface Enhanced*

Raman Scattering) und TERS (*Tip-Enhanced Raman Spectroscopy*) sei auf Spezialliteratur verwiesen [42-46]. In den nachfolgenden Unterabschnitten soll zunächst nur eine kurze Einführung ins klassische Modell der Raman-Streuung gegeben werden und dann nichtlineare Raman-Streuung diskutiert werden. Abschließend folgt die Beschreibung des SF₆-Moleküls, dessen Raman-Aktivität in vielen der im weiteren Verlauf der Arbeit vorgestellten Experimente genutzt wurde. Für eine ausführlichere Darstellung der Raman-Streuung sei an dieser Stelle auch auf gängige Literatur der Atom- und Molekülphysik verwiesen [47-49].

3.2.1 Klassische Beschreibung des Raman-Effekts

Raman-Streuung bezeichnet die inelastische Streuung eines Photons an einem Molekül. Dabei geht das Molekül vom Anfangszustand $|i\rangle$ mit Energie E_i in den Zustand $|f\rangle$ mit Energie E_f bei Einstrahlung eines Photons $\hbar\omega_L$ und unter Aussendung eines Photons $\hbar\omega_S$ über. Die Energiedifferenz $\Delta E = E_f - E_i = \hbar(\omega_L - \omega_S)$ kann in Rotations-, Schwingungs- oder elektronische Übergänge des Moleküls umgewandelt werden. Der Energiezustand $E_V = E_i + \hbar\omega_L$, in dem sich das System während des Streuvorgangs befindet, wird als virtueller Zustand bezeichnet. Im speziellen Fall der resonanten Raman-Streuung fällt dieser mit einem realen Energieniveau des Moleküls zusammen (Abb. 7).

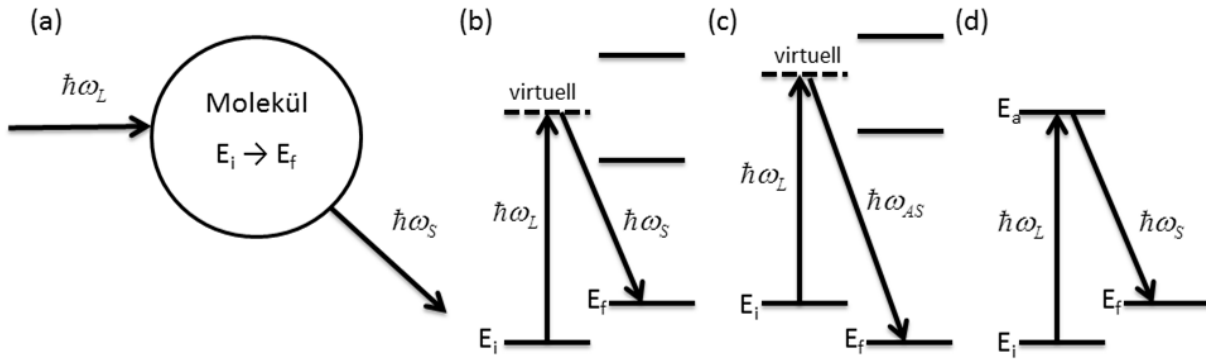


Abb. 7: Energetische Darstellung des Raman-Streuprozesses. In (a) ist die formale Beschreibung der Raman-Streuung an einem Molekül dargestellt. Die Termschemata sind für Stokes-Streuung (b), Anti-Stokes-Streuung (c) und resonante Stokes-Streuung (d) gezeigt.

Zur klassischen Beschreibung des Raman-Effekts nimmt man an, dass die einfallende Lichtwelle $E_L = E_0 \cdot \cos(\omega_L t)$ im Molekül mit der Polarisierbarkeit α ein oszillierendes Dipolmoment $\vec{\mu}_{ind}$ zusätzlich zum eventuell vorhandenen permanenten Dipolmoment $\vec{\mu}_0$ induziert:

$$\vec{\mu} = \vec{\mu}_0 + \vec{\mu}_{ind} = \vec{\mu}_0 + \alpha \cdot \vec{E}_L . \quad (29)$$

Die Polarisierbarkeit kann durch einen zweistufigen Tensor α_{ij} , der von der Molekülsymmetrie abhängt, beschrieben werden. Ist die Laserfrequenz weit entfernt von elektronischen Resonanzen oder Schwingungsresonanzen im Molekül, so kann die Verschiebung der Kernkoordinaten infolge der Polarisation der Elektronenhülle vernachlässigen und daher μ und α in eine Taylorreihe nach der Auslenkung der Kerne aus

der Gleichgewichtslage entwickeln. In linearer Näherung erhält man für die $(3Q - f)$ Normalschwingungen³ q_n eines Moleküls mit Q Atomen:

$$\vec{\mu} = \vec{\mu}_0 + \sum_{n=1}^{3Q-f} \left(\frac{\partial \vec{\mu}}{\partial q_n} \right) q_n \text{ und } \alpha_{ij} = \alpha_{ij}(0) + \sum_{n=1}^{3Q-f} \left(\frac{\partial \alpha_{ij}}{\partial q_n} \right) q_n . \quad (30)$$

Hierbei ist $f=5$ für lineare Moleküle und $f=6$ für gewinkelte Moleküle. Für kleine Schwingungsamplituden können die Normalkoordinaten q_n des schwingenden Moleküls durch harmonische Schwingungen beschrieben werden:

$$q_n(t) = q_{n0} \cos(\omega_n t) . \quad (31)$$

Einsetzen ergibt für das Dipolmoment:

$$\begin{aligned} \vec{\mu}(t) = & \vec{\mu}_0 + \sum_n \left(\frac{\partial \vec{\mu}}{\partial q_n} \right)_0 q_{n0} \cos(\omega_n t) + \alpha_{ij}(0) E_0 \cos(\omega_L t) \\ & + \frac{E_0}{2} \sum_n \left(\frac{\partial \alpha_{ij}}{\partial q_n} \right)_0 q_{n0} [\cos((\omega_L - \omega_n)t) + \cos((\omega_L + \omega_n)t)] \end{aligned} . \quad (32)$$

Der erste Term $\vec{\mu}_0$ beschreibt das permanente Dipolmoment des Moleküls. Der zweite Term beschreibt den mit der Molekülschwingung oszillierenden Anteil, welcher für das Infrarot-Spektrum des Moleküls verantwortlich ist. Der dritte Term hängt von der Polarisierbarkeit α_{ij} ab und beschreibt die Änderung des Dipolmoments durch eine einfallende Lichtwelle. Das so oszillierende Dipolmoment erzeugt wiederum elektromagnetische Wellen mit der gleichen Frequenz und wird als Rayleigh-Streuung bezeichnet. Der vierte Term hängt von der Änderung der Polarisierbarkeit mit den Kernkoordinaten q_n ab und beschreibt die Raman-Streuung, die bei der verschobenen Frequenz $(\omega_L \pm \omega_n)$. Hierbei bezeichnet man den Fall der Frequenzverminderung als Stokes-Streuung und die Frequenzerhöhung als Anti-Stokes-Streuung.

Welche Übergänge eines Moleküls beobachtet werden können hängt somit von $\partial \alpha_{ij} / \partial q_n$ und $\partial \vec{\mu} / \partial q_n$ ab. Homonukleare zweiatomige Moleküle besitzen z.B. kein Infrarot-Spektrum ($\partial \vec{\mu} / \partial q_n = 0$) aber ein Raman-Spektrum. Bei mehratomigen Molekülen hängt es von der Art der Normalschwingung ab, ob $\partial \alpha_{ij} / \partial q_n = 0$ oder $\partial \vec{\mu} / \partial q_n = 0$ wird, also eine Molekülschwingung IR-aktiv oder Raman-aktiv ist.

3.2.2 Nichtlineare Raman-Streuung

Wenn die einfallende Lichtintensität groß genug ist, überschreitet die durch sie bewirkte Auslenkung den linearen Bereich. Das induzierte Dipolmoment $\vec{\mu}_{ind}$ ist dann nicht länger

³ Normalschwingungen bezeichnen eine linear unabhängige Zerlegung der Schwingungen des Moleküls und zeichnen sich dadurch aus, dass die Kerne des Moleküls bei einer Normalschwingung gleichzeitig durch die Ruhelage gehen und Gesamtimpuls und Gesamtdrehimpuls des Kerngerüsts Null sind.

proportional zur elektrischen Feldstärke und das Dipolmoment kann als Potenzreihe dargestellt werden:

$$\vec{\mu}(\vec{E}) = \vec{\mu}_0 + \alpha \vec{E} + \frac{1}{2} \beta \vec{E} \vec{E} + \frac{1}{6} \gamma \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \quad (33)$$

Hierbei bezeichnen α die Polarisierbarkeit, die β Hyperpolarisierbarkeit und γ die zweite Hyperpolarisierbarkeit. Für große Laserintensität kann die Raman-Streuung so stark werden, dass man den Einfluss auf die Moleküle nicht vernachlässigen kann. Laserfrequenz und Stokes-Frequenz sind durch die Frequenz der schwingenden Moleküle miteinander gekoppelt. Es kommt zu einer parametrischen Vierwellenmischung zwischen Laserwelle als Pumpwelle und Stokes- bzw. Anti-Stokes-Welle. Dabei kann man als Phasenanpassungsbedingung Energie- und Impulsbilanz aufstellen:

$$2\hbar\omega_L = \hbar\omega_S + \hbar\omega_{AS} \quad 2\hbar\vec{k}_L = \hbar\vec{k}_S + \hbar\vec{k}_{AS} \quad , \quad (34)$$

wobei $k = n(\omega) \frac{\omega}{c}$ die Wellenzahl bezeichnet. In Medien mit normaler Dispersion kann die Bedingung im Allgemeinen nicht in kollinearen Geometrien erfüllt werden [50].

Bei klassischer Raman-Streuung ist die Intensität der Stokes-Komponente deutlich höher als die Intensität der Anti-Stokes-Komponente. Ursache ist die geringe Besetzung von angeregten Molekül-Schwingungszuständen bei einer gegebenen Temperatur. Für nichtlineare Raman-Streuung gibt es diese Einschränkung für die Anti-Stokes-Komponente nicht, da durch die effiziente Stokes-Streuung genügend Moleküle in einem angeregten Schwingungszustand vorliegen.

3.2.3 Schwefelhexafluorid

Bei Schwefelhexafluorid (SF_6) handelt es sich um ein farb- und geruchloses, ungiftiges Gas, welches nicht brennbar ist. Technische Verwendung findet es als Isoliergas in der Hochspannungstechnik, als Schutzgas bei der Magnesiumverarbeitung, als Reinigungsgas bei der Aluminiumverarbeitung und in der Halbleiterindustrie. Da SF_6 das stärkste bekannte Treibhausgas ist, werden Anwendungen mit potentieller Freisetzung von SF_6 in die Atmosphäre aus Gründen des Klimaschutzes zunehmend reduziert [51]. Ursache für die Treibhauswirkung sind die IR-aktiven Schwingungen in Tab. 1.

Tab. 1: Schwingungen des SF_6 -Moleküls

Normalmoden	Wellenzahl in cm^{-1}	Schwingungsdauer in fs
Raman (A_{1g})	774.55	43
IR (T_{1u})	947.98	35
Raman (T_{2g})	523.26	64
Raman (E_g)	643.35	52
IR (T_{1u})	615.02	54
Inaktiv (T_{2u})	348.08	96

Die später vorgestellten Experimente untersuchen stimulierte Raman-Streuung an SF₆. Die wichtigste und am stärksten ausgeprägte Raman-aktive Schwingung in Tab. 1 ist die symmetrische Streckschwingung des Moleküls (A_{1g}). Mit einer Schwingungsdauer von 43 fs ist sie auch ein vielfältig untersuchtes Objekt für ultrakurze Laserpulse [52, 53]. Durch die Isotropie des Moleküls ist es auch sehr gut für die Untersuchung fundamentaler Effekte, z.B. Erzeugung von Hohen Harmonischen (Abschnitt 4.1.6), geeignet, da die Beschreibung der molekularen Dynamik dann nicht richtungsabhängig erfolgen muss. Dabei haben sich die Experimente von der Suche nach einem molekularen Medium mit hohem Ionisationspotential und hoher Polarisierbarkeit [54] zur fundamentalen Untersuchung der molekularen Elektronendynamik bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen gewandelt [52, 55]

Da der nichtlineare Brechungsindex für SF₆ ungefähr mit jenem von Argon übereinstimmt, gibt es zahlreiche Vergleichsexperimente mit beiden Gasen um den Unterschied zwischen atomarer und molekularer Wechselwirkung im nichtlinearen Verhalten zu untersuchen, z.B. für Filamentation [56]. Hierbei ist zusätzlich das komplexere Ionisationsverhalten im Vergleich zum Einzelatom zu berücksichtigen. Das Dissoziationsverhalten des Moleküls unter Bestrahlung mit ultrakurzen XUV-Pulsen zeigt, dass man selektiv durch spektrale Formung des XUV-Signals den Anteil bestimmter Ionisationsfragmente steigern oder vermindern kann [57].

Aufgrund der zahlreichen industriellen Anwendungen und klimaschädlichen Wirkung von SF₆ gibt es zahlreiche Tabellenwerke mit spektroskopischen Daten. Für die Experimente zum Ionisationsverhalten wurde dabei auf die Tabellenwerte aus [58] zurückgegriffen.

3.3 Propagation von ultrakurzen Laserpulsen durch optische Fasern

Optische Fasern bilden eine Schlüsseltechnologie im Bereich der Telekommunikation, der Sensorik und der Lasertechnologie. In diesem Abschnitt soll zunächst der prinzipielle Aufbau einer optischen Faser vorgestellt und dann als Beschreibungskonzept für die Propagation Lösungsverfahren für die nichtlineare Schrödinger-Gleichung vorgestellt werden. Diese Gleichung ermöglicht es, die nichtlinearen Effekte in einer Faser zu studieren und erlaubt den Vergleich mit den experimentellen Daten der nächsten Abschnitte.

Eine optische Faser besteht aus zwei Komponenten – einem Faserkern (*Core*) und Mantel (*Cladding*). Die wichtigsten Faserparameter sind der relative Brechzahlunterschied Δ zwischen *Core* und *Cladding* und der V -Parameter, der wichtig für die Beschreibung der geführten Moden in der Faser ist.

$$\Delta = \frac{n_{\text{Core}} - n_{\text{Cladding}}}{n_{\text{Core}}} \quad V = k_0 a \sqrt{n_{\text{Core}}^2 - n_{\text{Cladding}}^2} \quad (35)$$

Hierbei ist a der Radius des Faserkerns und k_0 die Wellenzahl.

3.3.1 Lösung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung

Generell existiert keine vollständige analytische Lösung der Maxwell-Gleichungen für ein nichtlineares optisches System. Für einen Vergleich mit experimentellen Resultaten können verschiedene Näherungen gemacht werden, z.B. eine skalare Wellengleichung wie die nichtlineare Schrödinger-Gleichung (*nonlinear Schrödinger equation*, NLSE). Für diese Gleichung gibt es in Form der *Split-Step Fourier Method* (SSFM) einen einfach zu

implementierenden Lösungsansatz. Eine dabei gemachte Näherung ist die Vernachlässigung der Trägerfrequenz (*slowly varying amplitude approximation*, SVAA). Daher ist die Methode insbesondere im Telekommunikationsbereich verbreitet. Allerdings kann man den Ansatz in gewissen Grenzen auch für Femtosekundenpulse benutzen. Eine ausführliche Herleitung und Diskussion findet sich in [36]. Für die Pulspropagation eines ultrakurzen Laserpulses durch eine Faser kann man folgende partielle Differentialgleichung aufstellen:

$$\frac{\partial A}{\partial z} + k_1 \frac{\partial A}{\partial t} + \frac{i}{2} k_2 \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} - \frac{1}{6} k_3 \frac{\partial^3 A}{\partial t^3} + \frac{\alpha}{2} A = i\gamma \left(|A|^2 A + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} (|A|^2 A) - T_R A \frac{\partial |A|^2}{\partial t} \right). \quad (36)$$

Im mit dem Laserpuls mitbewegten Bezugssystem $T = t - \frac{z}{v_{gr}} \equiv t - k_1 z$ ergibt sich:

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{i}{2} k_2 \frac{\partial^2 A}{\partial T^2} - \frac{1}{6} k_3 \frac{\partial^3 A}{\partial T^3} + \frac{\alpha}{2} A = i\gamma \left(|A|^2 A + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial T} (|A|^2 A) - T_R A \frac{\partial |A|^2}{\partial T} \right). \quad (37)$$

Man kann nun die Differentialgleichung nach Anteilen der Dispersion und der Nichtlinearität strukturieren:

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (\hat{D} + \hat{N}) A \text{ mit} \\ \hat{D} = -\frac{i}{2} k_2 \frac{\partial^2}{\partial T^2} + \frac{1}{6} k_3 \frac{\partial^3}{\partial T^3} - \frac{\alpha}{2} \text{ und } \hat{N} = i\gamma \left(|A|^2 + \frac{i}{\omega_0} \frac{1}{A} \frac{\partial}{\partial T} (|A|^2 A) - T_R \frac{\partial |A|^2}{\partial T} \right). \quad (38)$$

Dispersion und Nichtlinearität wirken gleichzeitig bei der Propagation durch die Faser, jedoch ist es für infinitesimal kleine Strecken h möglich einen Separationsansatz zu machen. Die Propagation von z nach $z+h$ erfolgt in zwei Schritten. Im ersten Schritt tritt nur die Nichtlinearität \hat{N} bei $\hat{D}=0$ auf und im zweiten Schritt betrachtet man die Dispersion \hat{D} bei $\hat{N}=0$.

$$A(z+h, T) \approx \exp(h\hat{D}) \exp(h\hat{N}) A(z, T) \quad (39)$$

Die Exponentialfunktion $\exp(h\hat{D})$ kann leicht durch eine Fourier-Transformation im Spektrum beschrieben werden.

$$\exp(h\hat{D}) B(z, T) = F_T^{-1} \exp \left[h\hat{D}(-i\omega) \right] F_T B(z, T) \quad (40)$$

Im Frequenzraum werden die zeitlichen Ableitungen $\frac{\partial}{\partial T}$ zu Multiplikationen mit $-i\omega$. Zur

Behandlung der Nichtlinearität \hat{N} gibt es verschiedene Ansätze für die Beschreibung einer eventuell vorhandenen z -Abhängigkeit bei der Propagation und die Beschaffenheit der Nichtlinearität. Der Vorfaktor $\gamma(\omega_0) = \frac{\omega_0 n_2}{c A_{eff}}$ beschreibt die Stärke der nichtlinearen

Wechselwirkung, indem nichtlinearer Brechungsindex n_2 und effektive Modenfläche A_{eff} ins Verhältnis gesetzt werden. Der erste Term der Nichtlinearität \hat{N} beschreibt Selbstphasenmodulation (*self-phase modulation*, SPM) und der zweite Term die Selbstaufsteilung (*self steepening*). Stimulierte Raman-Streuung (SRS) wird durch den letzten Term der Nichtlinearität ausgedrückt. Dabei bezeichnet T_R die Raman-Response des Mediums:

$$T_R \approx \int_0^{\infty} t (T_1^{-2} + T_2^{-2}) T_1 \exp(-t/T_2) \sin(t/T_1) dt . \quad (41)$$

Sie setzt sich im einfachsten Fall aus einer Schwingung mit der Raman-Frequenz $\Omega_{Raman} = \frac{1}{T_1}$ und einer Abklingzeit T_2 zusammen. Für in der Telekommunikationstechnik verwendete Glasfasern beträgt $T_1 = 12.2\text{fs}$ und $T_2 = 32\text{fs}$. Die einzelnen nichtlinearen Effekte können mit einer Vielzahl von numerischen Paketen untersucht werden (z.B. Lab2 [59]) und sind für eine Quarzglasfaser in Abb. 8 dargestellt.

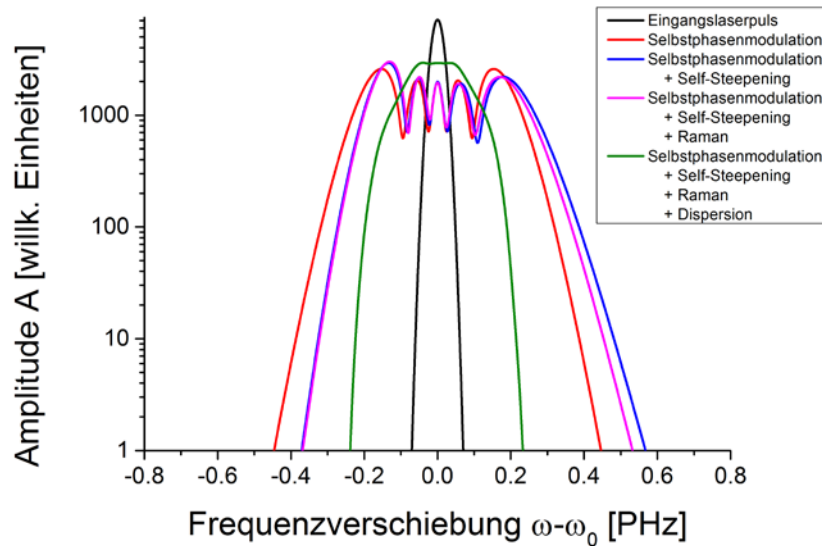


Abb. 8: Nichtlineare Wechselwirkungen bei der Pulspropagation eines Laserpulses durch eine Quarzglasfaser. Die schwarze Kurve zeigt den ursprünglichen Laserpuls (800 nm Wellenlänge, 100 μJ Pulsenergie, 100 fs Pulsdauer, 1 mm Stahldurchmesser). Für die Propagation durch eine 50 mm lange Quarzglasfaser sind die verschiedenen nichtlinearen Effekte aufgeschlüsselt dargestellt. SPM (rote Kurve) bewirkt eine symmetrische Verbreiterung des Spektrums. Betrachtet man zusätzlich noch *Self Steepening* (blaue Kurve) wird die Verbreiterung asymmetrisch. Die zusätzliche Betrachtung der Raman-Streuung ist durch die violette Kurve dargestellt und man beobachtet eine leichte Reduzierung der Blauverschiebung. Zusätzlich zu den nichtlinearen Effekten tritt natürlich auch Dispersion auf. Das resultierende Spektrum für Dispersion und Nichtlinearität ist als grüne Kurve dargestellt. Man erkennt, dass es durch die lange Propagationsstrecke zu einer Reduzierung der tatsächlich beobachtbaren nichtlinearen Effekte kommt.

Die *Split-Step Fourier Method* erlaubt es, die einzelnen Anteile der Nichtlinearität einzeln zu aktivieren bzw. zu deaktivieren und auch die Dispersion zunächst nicht zu betrachten. Für die Propagation eines Laserpulses mit 100 fs Pulsdauer spielt aber die Dispersion eine entscheidende Rolle und führt zu einem zeitlichen Auseinanderlaufen eines zunächst bandbreitenbegrenzten Laserpulses. Dies führt zu einer Absenkung der Intensität und bewirkt eine Verringerung der nichtlinearen Effekte. (Abb. 8). Für ultrakurze Laserpulse sind also Vollkernfasern aufgrund ihrer Dispersionseigenschaften ungeeignet. Zusätzlich müssen bei hohen Pulsenergien noch Zerstörschwellen des Glasmaterials berücksichtigt werden.

3.3.2 Hohlkernfasern

Für die hier vorgestellten Experimente wurden allerdings Hohlkernfasern verwendet. Der Brechungsindex im Kern der Faser kann also durch den Gasdruck bestimmt werden. Der entscheidende Vorteil von gasgefüllten Hohlkernfasern ist die geringe Dispersion und zusätzlich noch die Einstellbarkeit von Nichtlinearität und Dispersion über den Gasdruck für

gegebene Faserparameter. Ihre Verwendung ist ein etabliertes Verfahren zur spektralen Verbreiterung von ultrakurzen Laserpulsen, da sie die Vorteile einer langen Interaktionslänge mit dem nichtlinearen Medium und die einfache Komprimierbarkeit mit Prismen oder dispersionskompensierenden Spiegeln bieten. Die grundlegendste Arbeit zur Beschreibung von Hohlkernfasern wurde von E. Marcatili und R. Schmelzer durchgeführt [60]. Der effektive Brechungsindex in Kern der Faser ergibt sich aus dem Brechungsindex des Gasmediums und den Faserparametern Kerndurchmesser d und Material:

$$n_{\text{eff}}(\lambda) = n_{\text{Gas}}(\lambda, p) - 2 \left(\frac{2.405 \cdot \lambda}{2\pi \cdot n_{\text{Faser}}(\lambda) \cdot d} \right)^2. \quad (42)$$

In Abb. 9 ist der Zusammenhang graphisch für die in den folgenden Experimenten verwendeten Hohlkernfasern dargestellt. Durch den großen Faserdurchmesser von 250 μm kommt es zu fast keiner Modifikation des Brechungsindex des Gases. Bestimmt man die zweite Ableitung des Brechungsindex kann man die Gruppengeschwindigkeitsdispersion bestimmen bzw. durch Multiplikation mit der Faserlänge die Gruppenverzögerungsdispersion (*Group Delay Dispersion*, GDD). Für lineare Propagation in der Faser ergibt sich ein kleiner Beitrag der Dispersion im Vergleich zur Fokussierung mit Linsen und Ein- und Auskoppelfenstern.

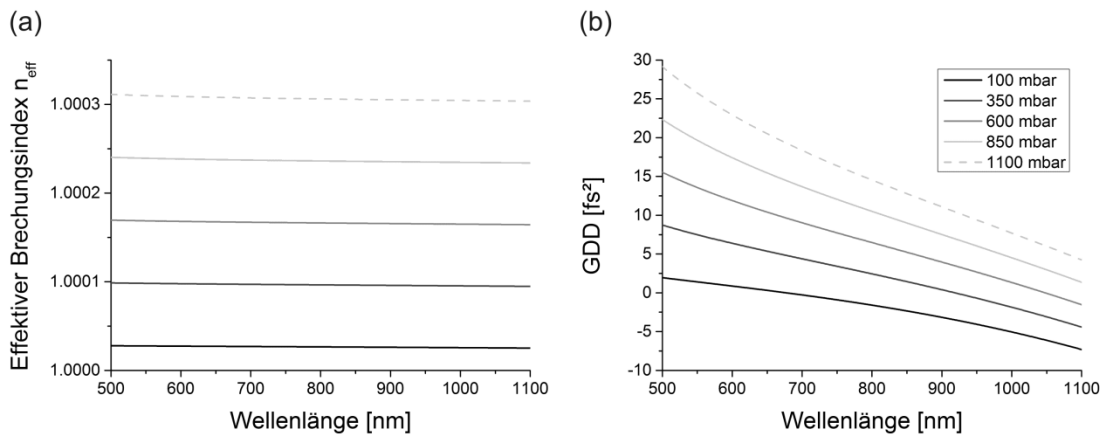


Abb. 9: (a) der effektive Brechungsindex einer mit Argon gefüllten Hohlkernfaser (250 μm Durchmesser, Quarzglas) für verschiedene Drücke. (b) Für eine Faserlänge von 78 cm ergibt die Gruppenverzögerungsdispersion (GDD). Hierbei unberücksichtigt bleiben zusätzliche GDD durch Linsen bzw. Ein- und Auskoppelfenster.

Wenn man für die Faser mit einer Argonfüllung von 1 bar dann die spektrale Verbreiterung unter Berücksichtigung von Selbstphasenmodulation und *Self Steepening* simuliert, erhält man als Ausgangssignal die spektrale Verteilung in Abb. 10.

Neben der typischen Modulation der Amplitude erkennt man eine quadratische spektrale Phase, die man nach der Faser mit einem Prismenkompressor oder gechirpten Spiegeln kompensieren kann. In der experimentellen Beobachtung (Abb. 11(a)) ist die spektrale Amplitude nicht so stark moduliert. Außerdem gibt es bei der mittleren Wellenlänge des Lasers kein Minimum. Ursache dafür ist, dass in der Simulation das räumliche Profil des Laserstrahls bzw. der Fasermodes nicht berücksichtigt wurde.

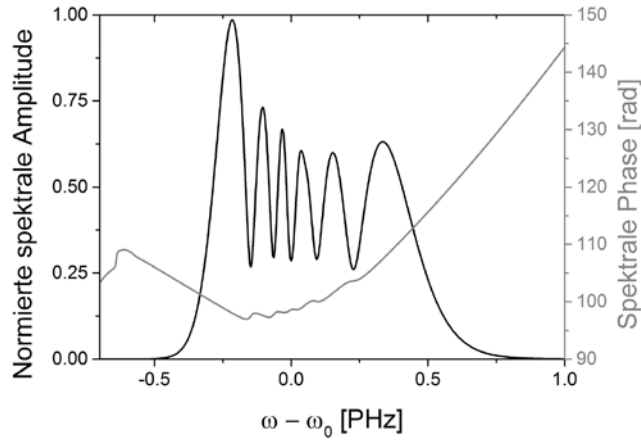


Abb. 10: Lineare und nichtlineare Wechselwirkung für eine mit Argon gefüllte Hohlkernfaser (1 bar, 250 μm Durchmesser, 78 cm Länge) mit Laserpulsen (800 nm Wellenlänge, 600 μJ Pulsenergie, 78 fs Pulsdauer).

3.4 Stimulierte Raman-Streuung in Hohlkernfasern

Ein bewährtes Mittel zu weiteren Verkürzung ultrakurzer Laserpulse aus Verstärkern ist ihre spektrale Verbreiterung und anschließende zeitliche Kompression [61]. Dabei verwendet man eine mit Edelgas gefüllte Hohlkernfaser und die anschließende Kompression wird mit Prismen oder dispersionskompensierenden Spiegeln durchgeführt. Die spektrale Verbreiterung erfolgt hierbei durch Selbstphasenmodulation, welche aus dem intensitätsabhängigen Brechungsindex resultiert:

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I(t). \quad (43)$$

Hierbei ist n_2 der nichtlineare Brechungsindex, der für Argon $(1.4 \pm 0.2) \cdot 10^{-19} \text{cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ beträgt. Als Ergebnis der Propagation durch eine mit Argon gefüllte Hohlkernfaser erfährt ein bandbreitenbegrenzter Laserpuls eine zusätzliche nichtlineare Phase, welche typischerweise zu einer spektralen Verbreiterung und einem positiven Chirp führt. Ein molekulares Medium mit ähnlichem nichtlinearem Brechungsindex wie Argon stellt SF_6 dar $(1.6 \pm 0.3) \cdot 10^{-19} \text{cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ [62]. Allerdings hat der spektrale Verbreiterungsmechanismus hierbei eine komplexere Struktur, da die Streckschwingungen des Moleküls berücksichtigt werden müssen (s. Abschnitt 3.2). Historisch gibt es, neben anderen, zwei prominente Verfahren, um von der zusätzlichen Raman-Aktivität zu profitieren. Entweder werden Laserpulse, die deutlich länger sind als die Schwingungsperiode in SF_6 fokussiert und die entstehenden Seitenbänder mit fester Phasenbeziehung werden anschließend in einem Prismenkompressor mit mehreren Spiegeln als Verzögerungsstrecken zu einem Puls komprimiert [63, 64]. Oder Laserpulse kürzer als die Schwingungsperiode werden zur impulsiven Anregung (*impulsive excitation*) genutzt. Ein verzögerter Probepuls propagiert dann durch diesen maßgeschneiderten molekularen Zustand (*dressed state*) und erfährt eine phasenkontrollierbare Verbreiterung [65]. Impulsive Anregung kann man spektral so auffassen, dass die Bandbreite des Laserpulses größer ist als der Raman-Abstand Ω_{Raman} . Im Folgenden soll zunächst das Zwischenregime beider Techniken untersucht werden, welches üblicherweise als transiente Raman-Streuung bzw. *non-stationary scattering* bezeichnet wird [66]. Um in diesem Bereich zu arbeiten, muss die Laserpulsdauer folgendermaßen gewählt werden:

$$1/\Omega_{\text{Raman}} < \tau_{\text{Puls}} \ll T_2. \quad (44)$$

T_2 ist das Inverse der Streubandbreite und beträgt ungefähr 6 ps für SF_6 [67]. Wenn man Pulsdauern im Femtosekundenbereich benutzt ist der resultierende spektrale Verbreiterungsmechanismus eine Überlagerung aus SPM und SRS ([68] und Abschnitt 3.3.1). Dabei ist für die Hohlkernfaser aufgrund ihrer kollinearen Geometrie keine Phasenanpassung für SRS gegeben. Zusätzlich kann die klare Interpretation von Spektren für breitbandige Laserspektren durch die hohe Frequenzabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für Raman-Streuung erschwert werden:

$$\sigma \propto (\tilde{\nu}_L - \tilde{\nu}_{\text{Raman}})^4. \quad (45)$$

3.4.1 Experimente bei 800 nm Wellenlänge

Für die Experimente bei 800 nm Wellenlänge wurden Laserpulse mit einer Energie von 850 μJ und einer einstellbaren Pulsdauer von 75 fs bis 300 fs in eine Hohlkernfaser (250 μm Innendurchmesser, 78 cm Länge) fokussiert, die sich innerhalb einer Gaszelle befindet, deren Druck zwischen 0 mbar und 2000 mbar eingestellt werden kann. Die verbreiterten Spektren wurden dann mit einem Spektrometer (Oceanoptics USB4000-VIS-NIR, Wellenlängenmessbereich von 350 nm bis 1000 nm) gemessen.

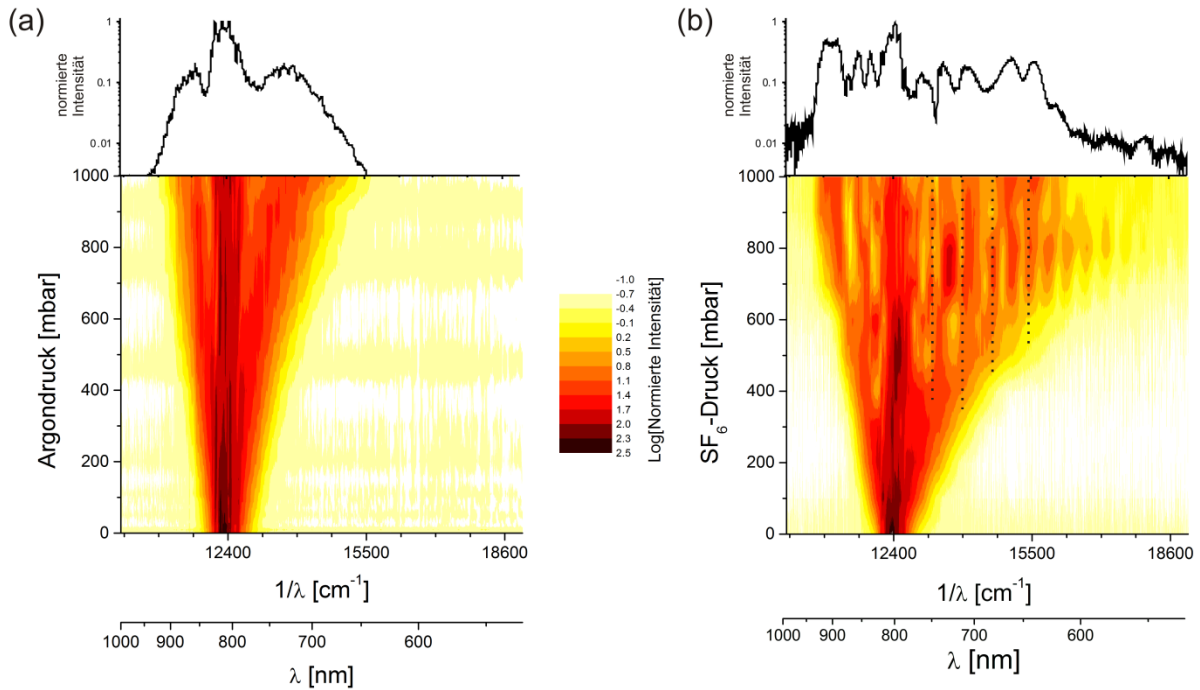


Abb. 11: Vergleich der spektralen Verbreiterung einer mit Argon (a) und SF_6 (b) gefüllten Hohlkernfaser in Abhängigkeit vom Fülldruck für unveränderte Laserparameter (850 μJ , 78 fs). Die Normierung erfolgte für die Ausgangsenergie nach der Hohlkernfaser und ist in einer logarithmischen Farbskala dargestellt. Darüber befinden sich jeweils Aufrisse beider Gase für 1000 mbar. Für SF_6 kann man die Erzeugung von Seitenbändern im Spektrum beobachten, welche durch SRS entstehen und der A_{1g} -Schwingungsmode zugeordnet werden können (der Abstand von 775 cm^{-1} ist durch gestrichelte Linien hervorgehoben).

Die spektrale Verbreiterung der Laserpulse in einer Hohlkernfaser ist für Argon und SF_6 als nichtlineares Medium in Abhängigkeit des Gasdrucks in Abb. 11 dargestellt. Für Argon beobachtet man dabei eine symmetrische spektrale Verbreiterung, wobei eine Erhöhung des Gasdrucks zu einer Erhöhung der spektralen Breite insgesamt führt. Betrachtet man allerdings

die Halbwertsbreite (FWHM) des Spektrums, so erhöht sich die ab einem bestimmten Druck nur noch geringfügig. Dadurch kann eine Limitierung für die Pulskompression entstehen. Vergleicht man die erzielten Spektren von Argon mit denen von SF₆, so können drei Beobachtungen nicht ausschließlich durch Selbstphasenmodulation erklärt werden (Abb. 11 (b)). Im Druckbereich unter 400 mbar ist die FWHM des Spektrums für SF₆ höher als für Argon. Somit könnte man bei sonst gleichen Parametern für SF₆ den Gasdruck um einen Faktor 2 bis 3 reduzieren oder entsprechend die benötigte Spitzenleistung des Laserpulses absenken. Dann ist die Blauverschiebung des Spektrums für SF₆ stärker ausgeprägt. Dies könnte für spektroskopische Anwendungen hilfreich sein, die mit kürzeren Wellenlängen arbeiten. Außerdem enthält das Spektrum von SF₆ Seitenbänder an festen Positionen, die der A_{1g}-Schwingung zugeordnet werden können. Dies führt zu einer gleichmäßigeren und größeren spektralen Verbreiterung im Vergleich zu Argon. Alle drei Beobachtungen können erklärt werden, indem man zusätzlich zur Selbstphasenmodulation auch Ionisation und stimulierte Raman-Streuung berücksichtigt. Für die hier betrachteten Parameter beträgt die Laserintensität am Eingang der Hohlkernfaser etwa $10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, was für Multiphotonenionisation für beide Gase ausreichend ist (Ionisationsenergien: 15.8 eV (Ar⁺) und 15.3 eV (SF₅⁺). Für Argon ist die Wahrscheinlichkeit für Doppelionisation sehr gering (27.6 eV).⁴ Jedoch sind für SF₆ weitere Ionisationsenergien sehr nah (16.9 eV und 18.3 eV), so dass Ionisation viel wahrscheinlicher wird [58] und sich die Ionisationsrate erhöht und als erhöhte Blauverschiebung im Spektrum beobachtbar ist [70]. Ab einem bestimmten Druck werden die Raman-Seitenbänder der A_{1g}-Schwingungsmode im Spektrum dominant, wobei die Anti-Stokes-Linien stärker ausgeprägt sind als die Stokes-Linien. Ursächlich dafür sind die spektrale Verbreiterung durch SPM und die spektrale Blauverschiebung durch Ionisation, welche bewirken, dass das verbreiterte Laserspektrum Frequenzkomponenten enthält, die genau den Raman-Niveaus entsprechen. Das ursprüngliche Laserspektrum hat eine Breite von 770 nm bis 820 nm und besitzt keinen Überlapp mit den Raman-Niveaus. Weiterhin muss man noch den höheren Wirkungsquerschnitt für Raman-Streuung für höhere Frequenzen berücksichtigen.

Diese Beobachtungen wurden in einem weiten Bereich von Laserparametern gemacht. Dazu wurde bei konstantem Gasdruck in der Hohlkernfaser die Eingangsenergie zwischen 100 µJ und 850 µJ variiert (Abb. 12(a)) und die Pulsdauer zwischen 75 fs und 300 fs durch Einfügen von positiver Dispersion verändert (Abb. 12(b)).

Betrachtet man in Abb. 11(b) nochmals, so fällt auf, dass ab etwa 600 mbar die Fasertransmission um einige Prozent sinkt. Ursache dafür können höhere Verluste für Fasermodes höherer Ordnung bzw. Selbstfokussierung am Fasereingang sein.

⁴ Als Ionisationsrate im Laserpuls kann man z.B. die ADK-Rate verwenden [69]. Dabei ist die entscheidende Skalierung $w_{ADK} \propto I_p^{1.5} / E$.

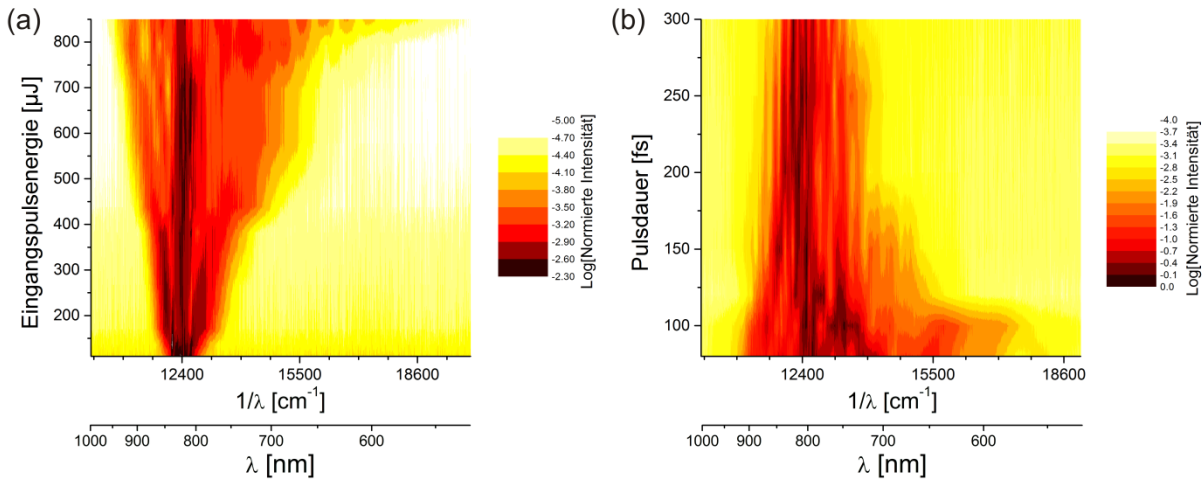


Abb. 12: Energieabhängigkeit (a) und Pulsdauerabhängigkeit (b) der spektralen Verbreiterung in einer mit 1000 mbar SF_6 gefüllten Hohlkernfaser. Die Eingangspulsenergie wurde durch ND-Filter variiert, während die Pulsdauer konstant bei 78 fs belassen wurde. Die Dauer der Eingangspulse wurde durch Einführen eines positiven Chirps geändert, wobei Spektrum und Pulsenergie von 850 μJ unverändert blieben.

Wenn man die erzielten Ergebnisse in Abb. 11 und Abb. 12 vergleicht, wird klar, dass sich durch eine geeignete Wahl von Pulsenergie, Pulsdauer und SF_6 -Druck ein Parameterbereich finden lässt, welcher gleichmäßige spektrale Verbreiterung, leichte Blauverschiebung und hohe Fasertransmission ermöglicht. Betrachtet man die Spektren in Abb. 11(b), stellt sich die Frage, welcher Druckbereich am besten für Pulskompression geeignet ist und insbesondere welches die minimale Pulsdauer und wie groß der Einfluss von Nachpulsen durch SRS ist. Um eine hohe Fasertransmission sicherzustellen, wurde für SF_6 ein Druck von 300 mbar gewählt. Hier lagen die Fasertransmission bei 60% und die Transmission durch den Prismenkompressor bei 90%, so dass komprimierte Pulse mit 450 μJ erreicht wurden. Die Messung der Pulsdauer mit einem GRENOUILLE ist in Abb. 6 (g-i) dargestellt. Die Laserpulse wurden auf 57 nm FWHM verbreitert und konnten auf 26 fs komprimiert werden. Im Abstand von 40 fs folgt dem Hauptpuls ein Nachpuls mit einer Pulsdauer von 15 fs. Dieser entspricht etwa der Raman-Periode der A_{1g} -Schwingung von 42 fs. Der Hauptpuls enthält 94% der Energie.

Neben dieser zeitlichen und spektralen Untersuchung wurde auch das Strahlprofil aus der Hohlkernfaser untersucht (Coherent LaserCam-HR, 1024×1280 Pixel, 6.7 μm Pixelgröße). Dabei zeigte sich, dass das räumliche Profil bei Drücken kleiner als 600 mbar rund ist und eine gaußsche Verteilung aufweist.

Eine vergleichbare Untersuchung kann man auch für Pulsdauern kürzer als die Raman-Periode durchführen. Dazu wurden Laserpulse mit 25 fs Pulsdauer und 530 μJ Pulsenergie in die Hohlkernfaser (250 μm Kerndurchmesser, 1 m Faserlänge) eingekoppelt. Die spektrale Verbreiterung in Abhängigkeit des Gasdrucks ist in Abb. 13 dargestellt. Vergleicht man diese mit Abb. 11(b) für 78 fs Pulsdauer erkennt man deutliche Unterschiede. Die spektrale Verbreiterung ist nicht so gleichmäßig vom Druck abhängig wie bei 78 fs und man beobachtet eine fast gleichbleibende spektrale Breite im Bereich zwischen 200 mbar und 700 mbar in Abb. 13. Ab 800 mbar beobachtet man eine drastisch einsetzende Weißlichterzeugung, welche die Raman-Seitenbänder enthält und insgesamt von einem Sinken der Fasertransmission um 20% begleitet wird. Diese Beobachtungen sind durch die kürzere Pulsdauer bzw. höhere spektrale Bandbreite des Laserpulses zu erklären. Innerhalb der Bandbreite des Laserpulses

sorgt stimulierte Raman-Streuung für eine Umverteilung der spektralen Anteile, bevor es zu einer Ausbildung von weiteren Seitenbändern kommt und man spektrale Verbreiterung außerhalb der Bandbreite des ursprünglichen Laserpulses beobachtet. Diese Strukturierung ist besonders deutlich bei 800 mbar in Abb. 13 sichtbar, wenn 4 Raman-Seitenbänder in der ursprünglichen Bandbreite des Laserpulses sichtbar sind. Für höhere Drücke werden dann weitere Seitenbänder angeregt und man beobachtet Weißlichterzeugung. Das plötzliche Einsetzen kann durch Ionisation am Fasereingang erklärt werden.⁵

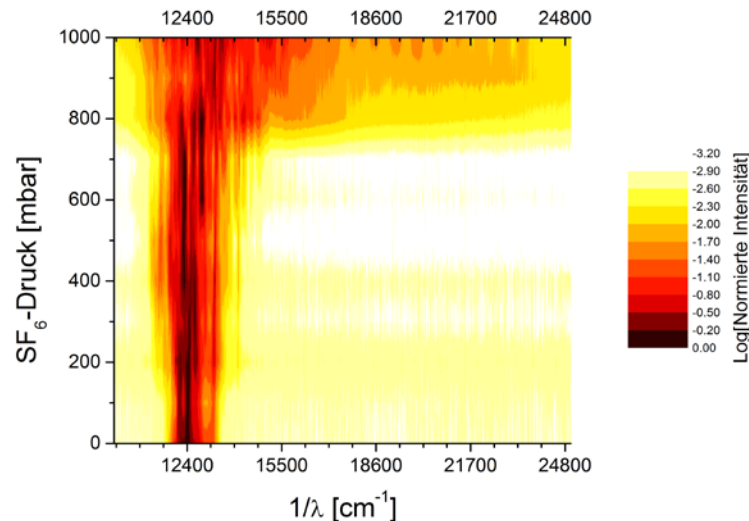


Abb. 13: Spektrale Verbreiterung in einer SF₆-gefüllten Hohlkernfaser in Abhängigkeit des Gasdrucks bei konstanten Laser-Parametern (530 μJ, 25 fs) in logarithmischer Farbskala.

Wiederum stellt sich aus Abb. 13 die Frage nach dem optimalen Druckbereich für eine mögliche Pulsdauerverkürzung durch die Kompression mit dispersionskompensierenden Spiegeln (FEMTOOPTICS GSM010). Vergleichsexperimente mit Argon (1 bar) als nichtlinearem Medium zeigen eine mögliche Pulsdauerverkürzung auf unter 10 fs (Abb. 6(d-f)). Für SF₆ wurde ein Druck von 150 mbar in der Faser gewählt und das verbreiterte Spektrum ist in Abb. 14(a) dargestellt. Bestimmt man durch Fourier-Transformation die zeitliche Form des elektrischen Feldes (Abb. 14(b)), so erkennt man abgesehen von einem zentralen kurzen Puls von 14.8 fs, Seitenflügel bei ±43 fs als Signatur der A_{1g}-Schwingung. Die Charakterisierung des Zeitsignals erfolgte durch eine interferometrische Autokorrelation (FEMTOLASERS FEMTOMETER) und das komprimierte Signal ist in Abb. 14(c) dargestellt. Hier zeigt sich ebenfalls ein zentraler kurzer Puls. Außerdem sind deutlich die Seitenflügel bei ±45 fs sichtbar. Zusätzlich gibt es noch weitere Seitenflügel bei ±18 fs. Weiterhin beobachtet man, dass die Autokorrelationsfunktion an den Rändern eine leichte Krümmung aufweist, was auf eine komplexe zeitliche Pulsstruktur hinweist. Die Intensitätsautokorrelation ergibt eine Pulsdauer von 33.3 fs, also im Vergleich zu den Eingangspulsen effektiv eine Pulsdauerverlängerung.

⁵ Zur Kompression von Laserpulsen unter 7 fs mithilfe von dispersionskompensierenden Spiegeln nach spektraler Verbreiterung hat es sich bewährt die Faser differenziell zu Pumpen, um Ionisation am Fasereingang zu vermeiden (Abb. 6(d-f)).

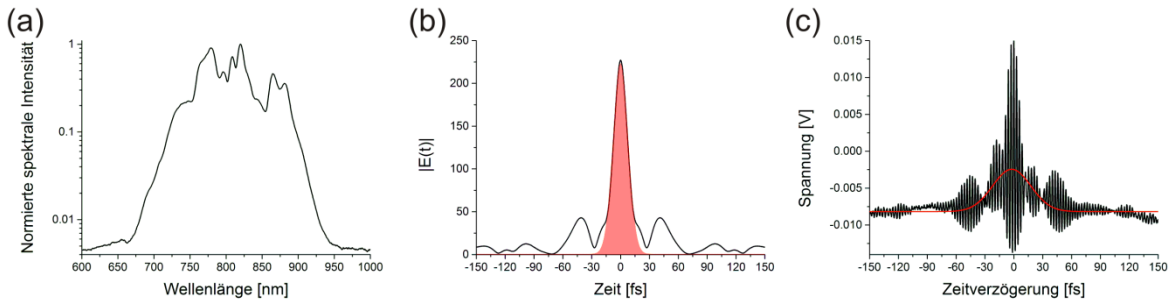


Abb. 14: Spektrale und zeitliche Charakterisierung des Ausgangssignals einer SF_6 -gefüllten Hohlkernfaser. Bei 150 mbar Gasdruck wird das Spektrum des Lasers (530 μJ , 25 fs) verbreitert (a). Bestimmt man den zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldes durch Fourier-Transformation des Spektrums unter Annahme einer flachen spektralen Phase (b), ergibt sich ein zentrales Maximum (14.8 fs FWHM) und Nebenmaxima, die der Raman-Periode zugeordnet werden können. (c) zeigt die interferometrische Autokorrelation (schwarze Kurve) und die durch zeitliche Mittelung erhaltene Intensitätsautokorrelation (rote Kurve). Man beobachtet einen zentralen Bereich (16 fs FWHM) und Nebenmaxima (± 43 fs und ± 18 fs). Außerdem ist die interferometrische Autokorrelation an den Rändern leicht gekrümmt. Die Intensitätsautokorrelation ergibt 33.3 fs Pulsdauer.

Für die direkte Erzeugung von Sub-10-Femtosekunden-Pulsen ist eine SF_6 -gefüllte Hohlkernfaser somit ungeeignet, da sich die molekulare Modulation in der Phase des elektrischen Feldes nicht kompensieren lässt. Allerdings kann man die Modulation des molekularen Mediums mit einem zweiten, nachfolgenden Laserpuls geschickt zur Verbreiterung und Kompression ausnutzen [65, 71].

Insgesamt hat sich durch die Messungen in mit SF_6 gefüllten Hohlkernfasern bei 800 nm Wellenlänge gezeigt, dass die zusätzliche Nichtlinearität des Moleküls durch stimulierte Raman-Streuung trotz fehlender Phasen Anpassung zu einer zusätzlichen Modulation führt. Für Anwendungen vielversprechend ist der Bereich der transienten Streuung, da dieser effektive Pulskompression um einen Faktor 3, geringe Absorptionsverluste und gute räumliche Strahlqualität bietet.

3.4.2 Laserpulsformung in einem Prismenkompressor

Ausgehend von den Hauptergebnissen für die spektrale Verbreiterung in einer SF_6 -gefüllten Hohlkernfaser stellt sich die Frage, wie man diese nutzbringend einsetzt. Dafür scheint eine Anwendung sinnvoll, die die erhöhte spektrale Verbreiterung und ggf. spektrale Modulation ausnutzen kann (Abb. 11), beispielsweise die Laserpulsformung in einem Prismenkompressor mit verformbarem Goldspiegel für die Erzeugung von Hohen Harmonischen in einer Hohlkernfaser (Abb. 15). Dabei handelt es sich um ein etabliertes Verfahren zur Kontrolle des XUV-Spektrums [72]. Die detaillierte Darstellung der Resultate erfolgt in Abschnitt 4.2, jedoch sei bereits erwähnt, dass sich durch die Verwendung von SF_6 für die spektrale Verbreiterung sowohl für die Amplitude als auch die Formbarkeit des XUV-Signals Vorteile ergeben.

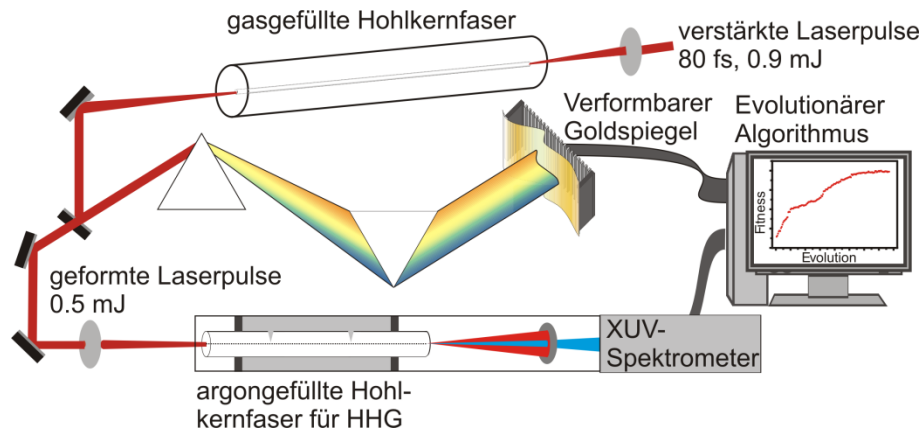


Abb. 15: Nach der spektralen Verbreiterung in einer mit Gas gefüllten Hohlkernfaser werden die Laserpulse durch einen Prismenkompressor gesendet, welcher mit einem verformbaren Goldspiegel zur Pulsformung ausgestattet ist. Danach werden die Laserpulse in eine mit Argon gefüllte Kapillare fokussiert, in der Hohe Harmonische erzeugt werden. Diese werden mit einem XUV-Spektrometer gemessen und sein Signal wird als Rückkopplungssignal für den Optimierungsalgorithmus genutzt.

3.4.3 Entwicklung eines Autokorrektors für breitbandiges Licht

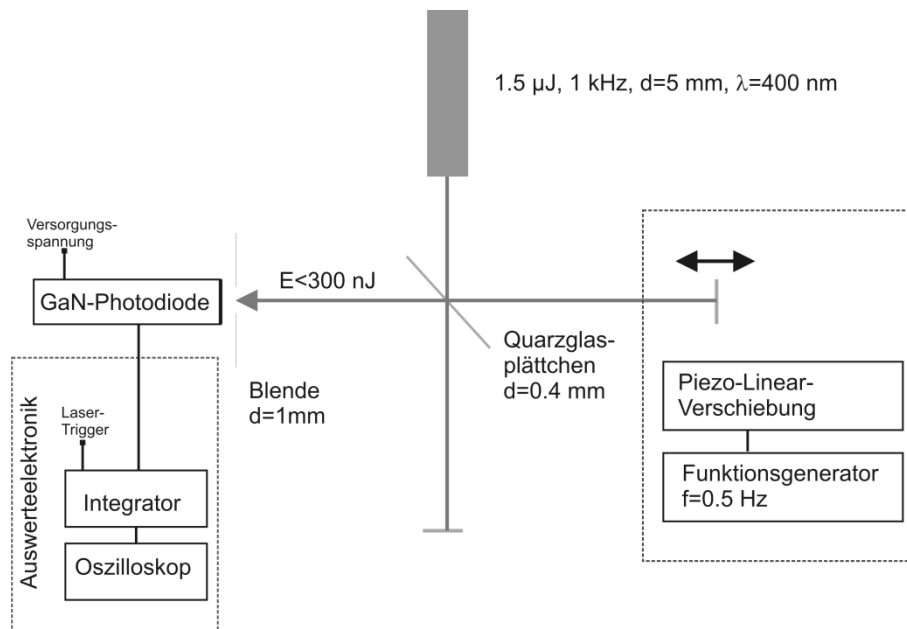


Abb. 16: Aufbau eines interferometrischen Autokorrektors für den Wellenlängenbereich zwischen 370 nm und 740 nm.

Um Untersuchungen der Pulsdauer auf die gleiche Weise auch bei 400 nm Wellenlänge durchführen zu können, war es nötig einen Autokorrektor zu entwickeln. Bei 400 nm ist die Verwendung eines frequenzverdoppelnden Kristalls (Abb. 3) zur Erzeugung der Summenfrequenz nicht möglich, da diese im Kristall und anderen Optiken absorbiert werden würde. Man kann als Prozess aber auch Zwei-Photonen-Absorption in einer Photodiode nutzen. Ein geeignetes Material für die Diode ist GaN, welches eine Bandlücke von 3.35 eV besitzt. Für den Prozess der Zwei-Photonen-Absorption ergibt sich also ein Wellenlängenbereich von 370 nm bis 740 nm. Der Autokorrektor ist in Abb. 16 schematisch dargestellt und nutzt nur unbeschichtete Optiken. Dies ist einerseits ein Nachteil, da somit die erforderliche Eingangspulsenergie recht hoch sein muss, da die Reflektivität des verwendeten 0.4 mm dicken Quarzglasplättchens nur 8% für s-Polarisation beträgt. Andererseits wird durch

unbeschichtete Optiken die große Bandbreite des Detektors nicht eingeschränkt. Weiterhin erlaubt es der unbeschichtete Strahlteiler, auf ein Kompensationsplättchen im Reflektionsarm des Autokorrektors zu verzichten. Eine ausführliche Beschreibung des Autokorrektors und die Charakterisierung der Photodiode findet sich in [16]. Eine Messung ist in Abb. 18 dargestellt.

3.4.4 Experimente bei 400 nm Wellenlänge

Um die Wellenlängenabhängigkeit der spektralen Verbreiterung zu untersuchen, wurden auch Experimente mit der zweiten Harmonischen des Titan-Saphir-Lasers durchgeführt. Zur Frequenzverdopplung wurde der Laser in einen 70 μm dicken BBO-Kristall fokussiert. Nach Filterung der fundamentalen Laserstrahlung konnten blaue Laserpulse mit 140 μJ Pulsenergie und 60 fs Pulsdauer erzeugt werden, welche in die Hohlkernfaser fokussiert wurden. Die Druckabhängigkeit der spektralen Verbreiterung ist für Argon und SF_6 in Abb. 17 dargestellt. In diesem Parameterbereich beobachtet man für beide Gase zunächst nur eine durch Selbstphasenmodulation erzeugte, symmetrische spektrale Verbreiterung. Aufgrund der geringen Intensität am Fasereingang ($4 \cdot 10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$) beobachtet man keine Blauverschiebung des Spektrums durch Ionisation und für SF_6 ist auch SRS vernachlässigbar, da die anfängliche spektrale Bandbreite zu gering ist (775 cm^{-1} entsprechen etwa 12.4 nm bei 400 nm Wellenlänge).

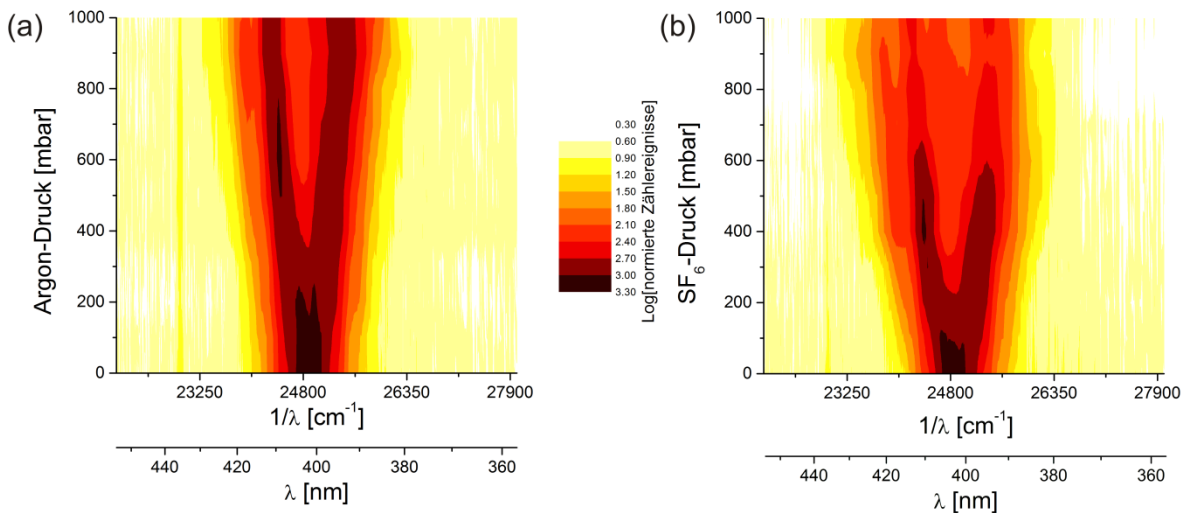


Abb. 17: Vergleich der Druckabhängigkeit der spektralen Verbreiterung in einer Hohlkernfaser für Argon (a) und SF_6 (b).

Wie schon bei 800 nm Wellenlänge kann für SF_6 die gleiche spektrale Verbreiterung bei halbiertem Druck im Vergleich zu Argon erreicht werden. Allerdings tritt auch deutlicher als bei 800 nm die reduzierte Fasertransmission hervor. Für 300 mbar SF_6 in der Hohlkernfaser konnten die Eingangspulse (6 nm FWHM) auf 15 nm FWHM verbreitert werden, was einer bandbreitenbegrenzten Pulsdauer von 16 fs entspricht. Diese Pulse wurden mit einem Prismenkompressor auf 23 fs bei einer Pulsenergie von 45 μJ komprimiert (Abb. 18).

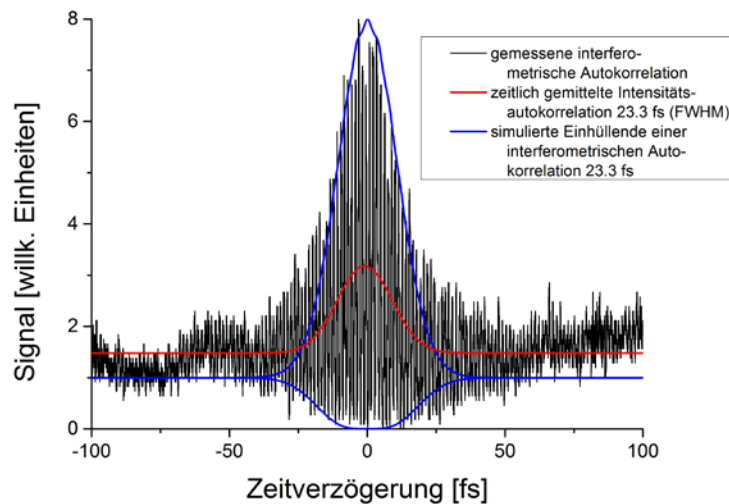


Abb. 18: Interferometrische Autokorrelation für spektral verbreiterte und anschließend komprimierte Laserpulse bei 400 nm Wellenlänge.

3.4.5 Ultrakurze Laserpulse für ophthalmologische Untersuchung

Im medizinischen Bereich besitzen Laser zahlreiche Anwendungen. Insbesondere bieten optische Verfahren vielseitige diagnostische Möglichkeiten durch Fluoreszenz oder Raman-Streuung. So bietet Fluoreszenz-Lebensdauer-Mikroskopie (*fluorescence lifetime imaging microscopy*, FLIM) des menschlichen Auges die Möglichkeit altersbedingte Makuladegeneration (AMD) oder diabetische Retinopathie im Frühstadium festzustellen [73]. Betrachtet man ein FLIM-Signal des menschlichen Auges genau, ergeben sich im Anstieg der Fluoreszenz zwei Kanten, welche durch Flugzeiteffekte von der Linse des Auges und der Netzhaut hervorgerufen werden (Abb. 19).

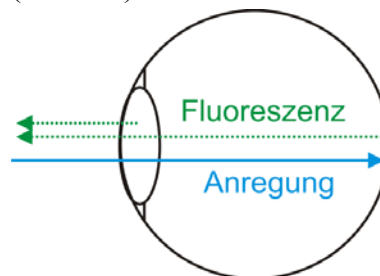


Abb. 19: Prinzipskizze der Anregung und Fluoreszenz beim menschlichen Auge. Der anregende Laserpuls erzeugt zuerst Fluoreszenz in der Linse und danach an der Netzhaut. Die Zeitverzögerung ist Anstieg des FLIM-Signals sichtbar.

Eine interessante Fragestellung ist nun, ob man die axiale Fluorophorverteilung innerhalb der Netzhaut messen kann und so einen medizinisch-diagnostischen Vorteil erhält. Durch den großen Durchmesser des Auges ist die Netzhaut für Mikroskopie mit hoher numerischer Apertur nicht zugänglich. Die Flugzeiteffekte innerhalb der Netzhaut sollten aber mit ultrakurzen Laserpulsen messbar sein, welche ohne starke Fokussierung auskommen.

Um das Potential und die Grenzen eines solchen Messverfahrens zu bestimmen, wurden einfache, geschichtete Fluorophorverteilungen in Reflektionsgeometrie untersucht [74]. Als Fluorophor wurde Rhodamin 6G benutzt, ein Laserfarbstoff, welcher bei 580nm starke Fluoreszenz zeigt. Als Anregung wurde die zweite Harmonische des Titan-Saphir-Lasers verwendet. Um zeitliche Auflösung im Femtosekundenbereich zu erzielen, wurde parametrische Fluoreszenz in einem BBO-Kristall genutzt, da aufgrund ungünstiger

Wellenlängen zur Detektion weder Summenfrequenzerzeugung noch Differenzfrequenzerzeugung in einem BBO möglich war. Der Messaufbau ist also ein nichtkollinearer optisch-parametrischer Verstärker, bei dem das Fluoreszenzsignal der Probe als Seed verwendet und mit einem Referenzsignal verglichen wird, um den Anstieg des Fluoreszenzsignals zu bestimmen (Abb. 20(b)).

Der Prozess der Fluoreszenz kann als 3-Niveau-System (Abb. 20(a)) mit Ratengleichungen beschrieben werden und das beobachtete Fluoreszenzsignal $F(t)$ der Probe ist [75]:

$$F(t) \propto \left(1 - \exp\left[-(\Gamma_{32} - A_{21})t\right]\right) \exp(-A_{21}t) = \exp(-\Gamma_{32}t) - \exp(-A_{21}t). \quad (46)$$

Hierbei sind $\Gamma_{32} = \frac{1}{\tau_{th}}$ die Thermalisationsrate und $A_{21} = \frac{1}{\tau_{fl}}$ die Fluoreszenzrate. Für die

Auswertung des Anstiegs im Fluoreszenzsignal muss die Thermalisationszeit τ_{th} auf etwa 10 fs genau bestimmt werden, um diese beträgt für Rhodamin 6G gelöst in Ethanol (1.8 mmol/l) 530 fs [74].

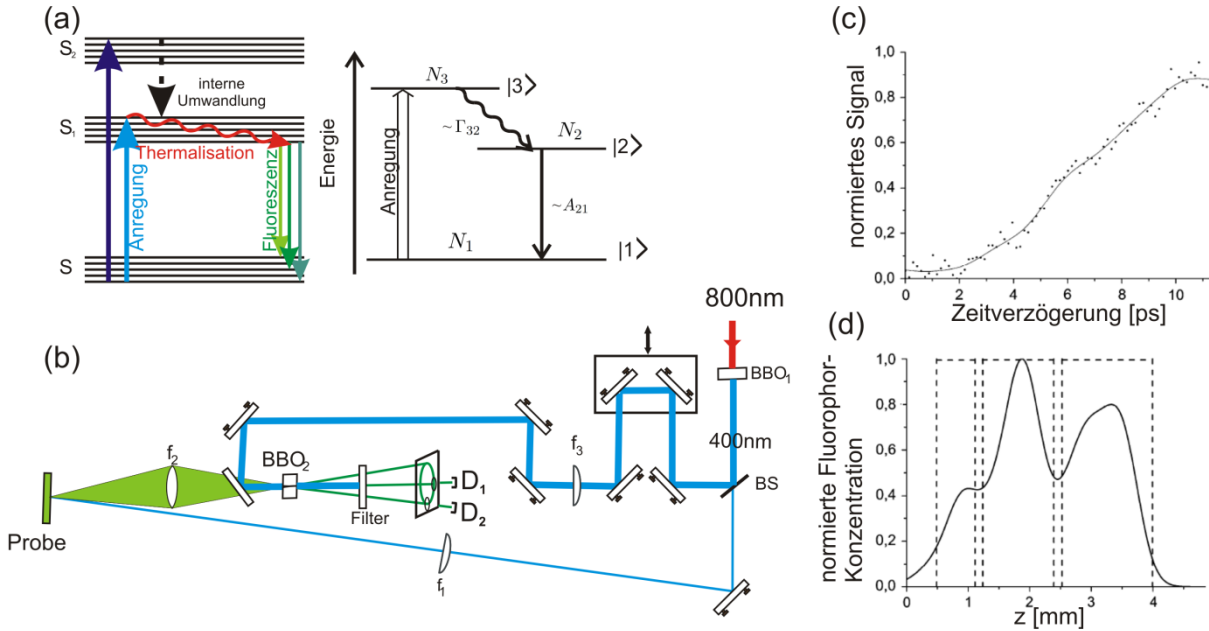


Abb. 20: Anregung und Fluoreszenz eines Moleküls sind in (a, links) dargestellt. Nach Anregung aus dem Grundzustand relaxiert das Molekül durch interne Umwandlungsprozesse durch Rotations- und Schwingungsbänder in einen elektronisch angeregten Zustand. Findet ein optischer Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand statt, so wird dies als Fluoreszenz bezeichnet. Vereinfacht kann dieser Prozess als Drei-Niveau-System dargestellt (a, rechts) und durch Ratengleichungen beschrieben werden. Der experimentelle Aufbau ist in (b) dargestellt. Dabei wird ein 400 nm Laserpuls zum Erzeugen der Fluoreszenz und zum Pumpen des optisch-parametrischen Verstärkers aufgespalten und zeitlich aufgelöst das Signal der verstärkten Fluoreszenz als Differenzmessung mit 2 Dioden gemessen. Ein gemessenes Fluoreszenzsignal ist in (c) gezeigt und die daraus entfaltete Fluorophorverteilung (durchgezogene Linie) ist zusammen mit der tatsächlichen Verteilung (gestrichelte Linien) in (d) dargestellt. Es handelt sich dabei um eine 3.5 mm lange Küvette, welche mit Rhodamin 6G gefüllt ist, und 0.15 mm dicke Glasplättchen, welche 0.9 mm Abstand besitzen.

Nimmt man als Anregepuls einen gaußschen Laserpuls $P(t)$ an, welcher durch eine Fluorophorverteilung in z – Richtung propagiert, so ergibt sich das axiale Gesamtsignal [17]:

$$S(t) = \int_{-\infty}^t F(t - \tau_1) \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_{fl}(\tau_1) P(\tau_1 - \tau_2) d\tau_2 d\tau_1. \quad (47)$$

Dabei überführt man die z – Ausdehnung der Probe über $z = t \cdot v_{gr}$ in eine Zeitabhängigkeit und das Signal $S(t)$ wird dann im Experiment mit Femtosekundenauflösung erfasst. Dabei muss dann als zusätzliche Faltung die Pulsdauer des Gatepulses berücksichtigt werden. Neben den theoretischen Überlegungen spielt das Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei der Messung eine entscheidende Rolle bei der erreichbaren axialen Auflösung [17], da ein nichtlinearer Prozess zur Messung benutzt wird und sich so die Schwankungen der verwendeten Laserpulse entsprechend potenzieren. Eine Messung ist in Abb. 20(c) dargestellt und man erkennt deutliches Rauschen in den Datenpunkten. Durch FFT-Filterung wurde die Signalkurve geglättet und benutzt um die Fluorophorverteilung zu bestimmen (Abb. 20(d), Details des iterativen Rekonstruktionsalgorithmus in [74]), welche gut mit der tatsächlichen Verteilung übereinstimmt. Allerdings ist die erreichte räumliche Auflösung im Bereich von einigen 100 μm . Für die Untersuchung feiner strukturierter Proben muss man das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessern, um über eine geringere Anzahl von Datenpunkten zu mitteln.

Im experimentellen Aufbau wurde der BBO-Kristall zur Erzeugung der zweiten Harmonischen relativ dick gewählt (0.7 mm Dicke, 8 mm Aperturdurchmesser), um einer kollimierten Laserpuls zur Frequenzkonversion zu nutzen. Verwendet man die 80 fs-Pulse aus dem Laserverstärker, so ergibt sich aufgrund der verschiedenen Gruppengeschwindigkeiten im Kristall für 400 nm und 800 nm die Entstehung einer Pulsstruktur mit etwa 150 fs Pulsdauer. Diese wird dann als Gatepuls (120 μJ) bzw. zur Erzeugung der Fluoreszenz (3 μJ) benutzt. Die lange Pulsdauer beeinflusst einerseits die minimal auflösbare Zeitstruktur im Anstieg der Fluoreszenz und andererseits senkt sie auch die Ausgangsleistung für die optisch-parametrische Verstärkung und beeinflusst das Signal-zu-Rausch-Verhältnis.

Eine Möglichkeit den Aufbau zu verbessern ist die Verwendung eines dünneren BBO-Kristalls zur Frequenzkonversion. Benutzt man einen 70 μm dicken Kristall, fallen Effekte der unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeit zwischen erzeugendem Laserpuls und zweiter Harmonischer nicht mehr ins Gewicht. Für eine ausreichend hohe Konversion muss man allerdings in den Kristall fokussieren und danach den entsprechenden 400 nm-Anteil wieder kollimieren. So konnte auch für den dünnen BBO etwa 150 μJ bei 60 fs Pulsdauer erzeugt werden. Platziert man den BBO-Kristall nach dem Laserfokus, so ergibt sich eine zusätzliche räumliche Instabilität durch die Plasmaerzeugung, welche für die parametrische Fluoreszenz eine zusätzliche Rauschquelle darstellen würde. Räumliche Stabilität kann man erreichen, wenn man anstatt der Kollimation des frequenzverdoppelten Laserstrahls direkt in eine Hohlkernfaser einkoppelt und am Faserausgang ein räumlich stabiles Ausgangssignal erzeugt wird. Zusätzlich bietet sich die Möglichkeit der spektralen Verbreiterung und anschließender Kompression (Abschnitt 3.4.4). Somit hat man 45 μJ Pulsenergie bei 23 fs Pulsdauer zur Bestimmung des Anstiegs der Fluoreszenz zur Verfügung. Diese erhöhte Zeitauflösung kann man dann zur Untersuchung feiner strukturierter Schichtsysteme nutzen [17].

3.4.6 Spektrale Verbreiterung in antiresonanten Hohlkernfasern

Die bisher vorgestellten Messungen wurden für Hohlkernfasern mit 250 μm Innendurchmesser durchgeführt. Hierbei wurde die Nichtlinearität über den intensitätsabhängigen Brechungsindex beschrieben und es besteht prinzipiell die Möglichkeit eine geringere Pulsspitzenleistung eines Lasers durch stärkere Fokussierung und geringere Kerndurchmesser zu kompensieren. Dabei erweist sich die Skalierung des Verlusts der

Hohlkernfaser $L \propto \lambda^2/d^3$ als sehr ungünstig und bewirkt ein rasches Absinken der Fasertransmission [60].

Eine Möglichkeit die hohen Verluste zu reduzieren, ist die Strukturierung der Faser, z.B. die Ergänzung des Hohlkernfaseraufbaus um eine photonische Bandlücke (*hollow-core photonic crystal fibers* HC-PCF) bzw. speziell Kagomé-Fasern [76, 77], um so spektrale Verbreiterung über mehrere optische Oktaven zu erzielen. Für eine Übersicht über die theoretischen und experimentellen Details sei an dieser Stelle auf Spezialliteratur verwiesen [78, 79]. Prinzipiell kann man den komplexen physikalischen Prozess der starken spektralen Verbreiterung (*supercontinuum generation*) in zwei Bereiche unterteilen:

1. Für normale Dispersion (positive GVD) wird die spektrale Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation und *Self-Steepening* hervorgerufen [80]. Dies ist der Bereich, der in den vorherigen Abschnitten diskutiert wurde.
2. Für anomale Dispersion (negative GVD) spielt die Solitonendynamik die entscheidende Rolle, insbesondere ihre Selbstkompression (*soliton pulse self-compression*), ihre Aufspaltung (*soliton fission*) und Emission dispersiver Wellen (*dispersive wave emission*) [79, 81, 82].

Die hier vorgestellte HC-PCF bezeichnet man als antiresonante Hohlkernfaser (*anti-resonant hollow-core fiber*, ARHCF), welche einen zusätzlichen Freiheitsgrad im Dispersionsmanagement über die Resonanz bietet [83]. Das Funktionsprinzip dieser Fasern beruht auf der hohen Reflektivität dielektrischer Schichten bei streifendem Einfall bzw. Interferenz zwischen zwei Schichten als Fabry-Pérot-Interferometer [84, 85]. Falls die verwendete Schichtdicke im Bereich der Laserwellenlänge ist, kann die Resonanz verursachen, dass Licht durch die Glasschicht propagiert. Die spektrale Lage der Resonanzen wird durch die Schichtdicke des Materials t und seinen Brechungsindex n bestimmt.

$$\lambda_m = \frac{2t}{m} \sqrt{n^2 - 1} \text{ mit } m = 1, 2, 3, \dots \quad (48)$$

Zwischen benachbarten Resonanzen wird die Reflektivität der Schichten sehr hoch und eine hohe Fasertransmission wird in dem entsprechenden Wellenlängenbereich erreicht. Daher bezeichnet man dieses Prinzip der Wellenleitung auch als antiresonant (*anti-resonant reflecting optical waveguide*, ARROW) und der Verlust einer Hohlkernfaser mit 50 μm Kerndurchmesser kann von einigen 10 dB/m (unstrukturierte HCF) auf einige dB/m (antiresonante HCF) reduziert werden [86, 87].

Die GVD einer Hohlkernfaser wird durch die zweite Ableitung der Propagationskonstanten

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} \left(n_{\text{gas}}(\omega, p) - 2 \left(\frac{2.405c}{\omega d} \right)^2 - \frac{a(\omega - \omega_r)}{(\omega - \omega_r)^2 + b} \right) \quad (49)$$

nach der Frequenz ω bestimmt. Neben dem Kerndurchmesser d kann man durch die spektrale Lage und Breite der Resonanz das Dispersionsprofil der antiresonanten Hohlkernfaser stark beeinflussen. Somit ist es möglich vier Nullstellen der Dispersion (*zero dispersion points*) im Transmissionsbereich der Faser zu erzeugen und spektrale Verbreiterung sowohl für positive als auch negative Dispersion zu studieren.

Die in den Experimenten verwendete antiresonante Hohlkernfaser ist in Abb. 21(a) dargestellt und besitzt einen Hohlkerndurchmesser von 50 μm , welcher von 6 Stegen mit einer durchschnittlichen Dicke von 495 nm durchsetzt ist. Die herstellungsbedingte Variation der

Dicke der Stege bewirkt eine Verbreiterung der Resonanzen. In den Transmissionsbereichen besitzt die Faser einen Verlust von 5 bis 10 dB/m.

Zur Untersuchung der spektralen Verbreiterung wurden Laserpulse analog zu den vorherigen Abschnitten verwendet (800 nm Wellenlänge, 90 fs Pulsdauer), deren Energie auf 50 μ J abgeschwächt wurde. Die Feineinstellung der Pulsenergie erfolgte dann über eine Halbwellenplatte und einen Polarisator im Bereich zwischen 1 μ J und 50 μ J. Die Laserpulse wurden dann mit einer Fokussierlinse (20 cm Brennweite) in die 25 cm lange Faser gekoppelt, welche sich in einer differentiell gepumpten Gaszelle befindet. Innerhalb der Gaszelle wurde an der Rückseite der Faser das Gas als nichtlineares Medium eingelassen (6 bar Krypton) und an der Vorderseite der Faser Vorvakuumbedingungen von etwa 1 mbar geschaffen, um Ionisation am Fasereingang zu vermeiden. Nach der Faser wurde das Ausgangssignal räumlich und spektral analysiert. Um einen großen spektralen Bereich abzudecken, wurden drei Spektrometer benutzt (Oceanoptics USB4000 UV-VIS-ES, USB4000 VIS-NIR, NIRQuest512), deren spektraler Überlapp es erlaubt, das Gesamtsignal zu bestimmen. Zusätzlich wurden verschiedene optische Kurz- und Langpassfilter (Thorlabs FES 750, FEL 900, FEL 1150; Edmund Optics ShortPass 525 OD4) verwendet, um die Sättigung des Signals bei 800 nm zu vermeiden. Durch Rückrechnung der Transmissionsfunktionen der Filter und Reflektionsfunktion der verwendeten Spiegel kann man die spektrale Verbreiterung im Wellenlängenbereich zwischen 200 nm und 1700 nm bestimmen (Abb. 21(b)). Die Bestimmung des räumlichen Profils nach der Faser erfolgte mit einem CCD-Chip (Silizium bzw. InGaAs) und Interferenzfiltern für verschiedene Wellenlängenbereiche.

Mithilfe des räumlichen Profils kann die Einkopplung in die Faser optimiert werden und die erreichten Transmissionen liegen im Bereich um 65%. Im nächsten Schritt kann die Pulsenergie erhöht und spektrale Verbreiterung beobachtet werden (Abb. 21(b)). Dabei beobachtet man zunächst eine Verbreiterung des Spektrums durch Selbstphasenmodulation und *Self-Steepening* (rote Linie in Abb. 21(b)). Durch weitere Erhöhung der Pulsenergie kann das Spektrum soweit verbreitert werden, dass es die Resonanz ($m=1$) erreicht. Dann beobachtet man das Einsetzen eines zusätzlichen Verbreiterungsmechanismus bis zur Resonanz ($m=2$) bei kürzeren Wellenlängen (gelbe Linie in Abb. 21(b)). Wird die Eingangsenergie noch weiter erhöht, beobachtet man eine Verbreiterung über die Resonanzen hinaus (blaue Linie in Abb. 21(b)). Bemerkenswert bei der beobachteten spektralen Verbreiterung ist, dass ihre Bandbreite nicht linear mit Erhöhung der Eingangsenergie wächst (vgl. Abb. 12(a) für eine unstrukturierte Hohlkernfaser), sondern dass durch die resonanten Strukturen in der Faser ein schwellenartiges Verhalten erzeugt wird. Weiterhin werden durch den Verbreiterungsmechanismus die hohen Verluste durch die Resonanz ausgeglichen [88]. Insgesamt ergibt sich im Bestfall für eine antiresonante Hohlkernfaser ein Spektrum, dass sich über drei optische Oktaven von 200 nm bis 1700 nm erstreckt. Hierbei befinden sich etwa 75% des Signals im infraroten (>700 nm), 24% im sichtbaren (400 nm bis 700 nm) und etwa 1% im ultravioletten (<400 nm) Spektralbereich und das Strahlprofil ist im gesamten Wellenlängenbereich eine Grundmode.

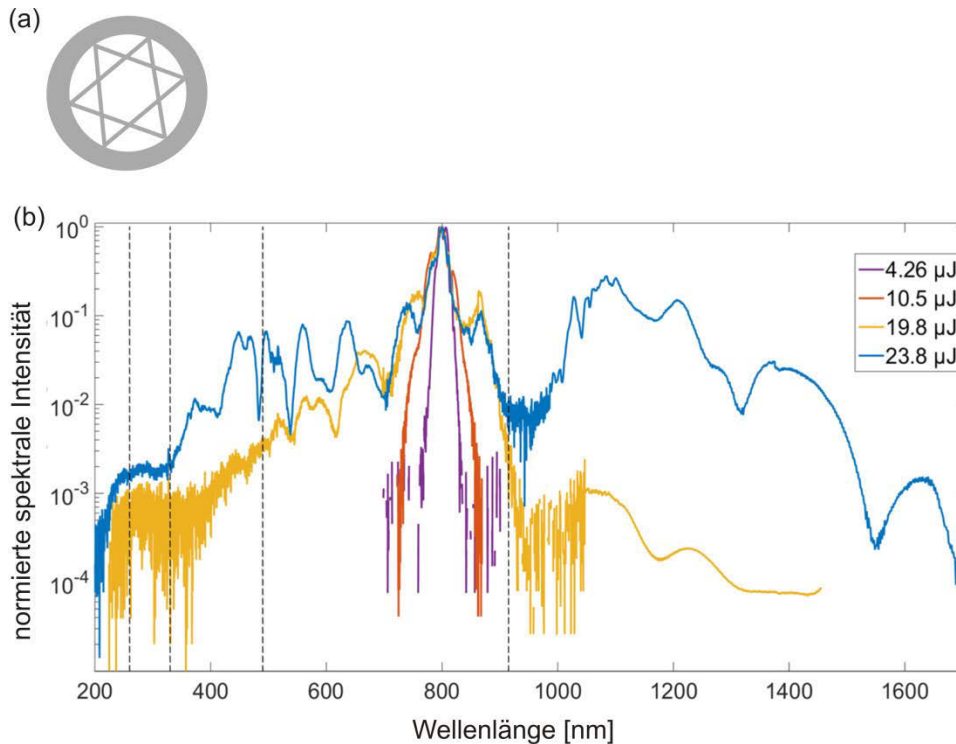


Abb. 21: Spektrale Verbreiterung in einer antiresonanten Hohlkernfaser. (a) zeigt das Faserdesign einer Hohlkernfaser mit 50 μm Innendurchmesser, in welchem sechs Glasstege (Dicke 495 nm) einen Fabry-Pérot-Resonator formen. Einige Spektren für die spektrale Verbreiterung in Krypton sind in (b) entsprechend der jeweiligen Ausgangsleistung der Faser dargestellt. Zusätzlich sind die Resonanzen der Faser als gestrichelte vertikale Linien eingezeichnet.

Die physikalische Ursache für die beobachtete schwellenartige Verbreiterung des Spektrums ist Gegenstand aktueller Forschung [18]. Qualitativ bewirken die Resonanzen eine Änderung des Vorzeichens der Gruppengeschwindigkeitsdispersion nach Gleichung (49) und Erzeugen so einen Wechsel zwischen Verbreiterung durch Selbstphasenmodulation und *Self-Steepening* und der Verbreiterung über Solitonendynamik.

Konzeptionell interessant ist, dass man über die Breite der Glasstege die spektrale Position der Resonanzen beeinflussen kann. Dies erlaubt eine einfache Anpassung an die Wellenlänge des Lasers, um den Verbreiterungsmechanismus der Solitonendynamik zugänglich zu machen. Dies ermöglicht es einerseits ein preiswerteres Edelgas zur anfänglichen spektralen Verbreiterung zu nutzen (z.B. Argon, insbesondere bei differentiell gepumpten Betrieb) und andererseits die erforderlichen Laserparameter zu reduzieren (geringere Pulsenergie bzw. höhere Pulsdauer).

Im Vergleich zu den unstrukturierten Hohlkernfasern erweist sich die Präparation der antiresonanten Hohlkernfasern als schwieriger, da insbesondere Schnitte so erfolgen müssen, dass eine hohe Qualität der Schnittflächen und insbesondere keine Beschädigung der Glasstege gewährleistet ist. Da eine Kontrolle der Glasstege nur an den Stirnflächen der Faser möglich ist, gibt meist nur eine Transmissionsmessung der Faser im Experiment Aufschluss über mögliche Beschädigungen im Inneren der Faser. Durch den Fertigungsprozess der antiresonanten Hohlkernfaser kann es außerdem zu einer leichten Variation der Stegbreiten kommen und somit zu einer leichten Variation der Lage und Breite der Resonanzen bzw. der Dispersionseigenschaften der Faser. Von besonderer Wichtigkeit ist deshalb die experimentelle Bestimmung der Dispersion der Faser für den Vergleich mit den

Designparametern der Faser [89]. Durch leichte Asymmetrien der antiresonanten Hohlkernfaser wird diese doppelbrechend. Es ist Gegenstand aktueller Forschung, ob dies eher als Vorteil oder als Nachteil zu sehen ist [90, 91]. Möchte man das verbreiterte Spektrum aus einer antiresonanten Hohlkernfaser zeitlich komprimieren, muss man den entsprechenden Verbreiterungsmechanismus berücksichtigen. Für Selbstphasenmodulation kann man die zusätzlich eingeführte positive Dispersion mit dispersionskompensierenden Spiegeln ausgleichen. Für den Bereich der Resonanzen kommt es zu schlagartigen Änderungen der Dispersion und somit enthält das verbreiterte Spektrum sehr hohe Ordnungen in der Taylorentwicklung der spektralen Phase [89].

3.4.7 Skalierung für Scheiben- und Faserlaser

Die im bisherigen Kapitel vorgestellten Experimente mit gasgefüllten Hohlkernfasern überstreichen einen großen Bereich für die verwendete Intensität am Fasereingang. Für die Glaskapillaren mit 250 μm Innendurchmesser wurden Pulsspitzenleistungen von 16 GW (Abb. 13) bis 10 GW (Abb. 11) benutzt und die Verwendung von SF_6 als nichtlineares Medium erlaubt im Vergleich zu Argon eine Halbierung der Eingangsintensität. Untersuchungen mit frequenzverdoppelten Laserpuls bei 2 GW Pulsspitzenleistung zeigten ebenfalls effiziente spektrale Verbreiterung und anschließende Pulskompression (Abb. 17). Industrielle und medizinische Anwendungen verlangen aber nach deutlich einfacher aufgebauten Lasern als den hier verwendeten Titan-Saphir-CPA-Systemen. Heutige Yb-dotierte Scheiben- und Faserlaser im industriellen oder medizinischen Einsatz ermöglichen Sub-100 μJ Pulsenergien und Sub-500 fs Pulsdauern bei hohen Pulswiederholraten in fast wartungsfreiem Betrieb. Um weitere Anwendungen zu erschließen, die von kürzeren Pulsdauern profitieren, benötigt man somit ein Verfahren, welches bei Sub-200 MW Pulsspitzenleistung für eine effiziente spektrale Verbreiterung sorgt. Gasgefüllte Hohlkernfasern sind hierfür das etablierte Verfahren, allerdings verhindert das ungünstige Skalierungsverhalten der Verluste eine Verkleinerung des Durchmessers um geringere Pulsspitzenleistung durch stärkere Fokussierung zu kompensieren. Einen möglichen Ausweg stellen antiresonante Hohlkernfasern dar. Sie erlauben eine effiziente spektrale Verbreiterung und hohe Transmission bei 200 MW Pulsspitzenleistung.

Je nach gewähltem Ansatz zur Absenkung der erforderlichen Lasereingangsparameter beobachtet man einige Unterschiede bei der spektralen Verbreiterung. Für die Verwendung von SF_6 bei 800 nm Wellenlänge ergibt sich aus der Kombination von SPM, SRS und Ionisation tendenziell eine stärkere Blauverschiebung des Spektrums. Für die antiresonante Hohlkernfaser mit Edelgasfüllung kann ein starker rotverschobener Anteil erzeugt werden.

In Zukunft sollte es somit möglich sein für ein Ultrakurzpulslasersystem im medizinischen oder industriellen Bereich je nach Anwendung ein maßgeschneidertes System aus antiresonanter Hohlkernfaser (Anpassung der Schichtdicke der resonanten Strukturen und des Kerndurchmessers) und nichtlinearer Wechselwirkung (Edelgas, molekulares Gas) zu entwerfen.

3.5 Stimulierte Raman-Streuung in konischer Geometrie

Im vorherigen Kapitel konnte stimulierte Raman-Streuung in SF_6 -gefüllten Hohlkernfasern beobachtet werden. Allerdings ist dabei aufgrund der kollinearen Geometrie keine Phasenanpassung gewährleistet und somit eine effiziente Frequenzverschiebung nicht

möglich. Eine einfache nicht-kollineare Geometrie stellen Bessel-Strahlen dar. Nach einer kurzen Einführung in die mathematische Formulierung von Bessel-Strahlen wird die Phasen Anpassung für stimulierte Raman-Streuung diskutiert. Die nachfolgend präsentierten experimentellen Ergebnisse zeigen, dass rotverschobene Laserpulse mit hoher Pulsenergie, kurzer Pulsdauer und exzellentem Stahlprofil erzeugt werden können, welche z.B. potentielle Einsatzmöglichkeiten als Seed-Strahl in Laser-Plasma-Verstärkern haben.

3.5.1 Mathematische Beschreibung von Bessel-Strahlen

Ein Grundphänomen in der Wellenoptik ist Beugung. Sie begrenzt das Auflösungsvermögen von Kameras und Mikroskopen. Von besonderem Interesse ist also immer, das Beugungslimit zu umgehen. Mathematisch gibt es dafür einen Spezialfall, wenn man die paraxiale Helmholtz-Gleichung löst – Bessel-Strahlen – deren Amplitudenfunktion $A(x, y)$ sich bei der Propagation in z – Richtung nicht ändert⁶.

$$\Delta_T A(x, y) + k_T^2 A(x, y) = 0 \text{ mit } \Delta_T = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \quad (50)$$

Für Zylindersymmetrie ($x = R \cos \phi$, $y = R \sin \phi$, $\Delta_T = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2}$) ergibt sich die Lösung der Differentialgleichung:

$$A(x, y) = A \cdot J_m(k_T R) \exp(im\phi) \text{ mit } m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (51)$$

Hierbei ist J_m die Bessel-Funktion 1. Art der Ordnung m . Typischerweise bezeichnet man den rotationssymmetrischen Fall $m = 0$ als Bessel-Strahl. Für die Propagation entlang der z – Achse ergibt sich dann:

$$A(R, z) = A \cdot J_0(k_T R) \exp(ik_z z) \quad (52)$$

Für den Fall $k_T \rightarrow 0$ ergibt sich der Spezialfall der ebenen Welle. Betrachtet man die Intensität bei der Propagation so ist diese unabhängig von z , weshalb Bessel-Strahlen auch beugungsfreie Strahlen genannt werden.

$$I_{lateral} \propto |A(R, z)|^2 = A^2 J_0^2(k_T R) \quad (53)$$

Ebenso wie ebene Wellen sind Bessel-Strahlen eine rein mathematische Lösung, weil für sie das Integral $P = \int_F IdF$ über die Gesamtfläche divergiert. Allerdings kann ein Bessel-Strahl

sehr gut durch die Verwendung eines Axicons approximiert werden [92]. Dabei handelt es sich um ein rotationssymmetrisches Prisma. Um die Pulspropagation durch das Axicon richtig zu beschreiben, muss man die wellenlängenabhängige Brechung am Prisma, durch die radial variierende Dicke des Prismas auftretende Dispersionsunterschiede und die Propagationseigenschaften des Bessel-Strahls berücksichtigen [93, 94].

Zahlreiche Anwendungen basieren auf der näherungsweisen Beugungsfreiheit von Bessel-Strahlen insbesondere bei Volumenproben, z.B. bei der Materialbearbeitung [95], der Zwei-Photonen-Mikroskopie [96] und optischen Pinzetten [97].

⁶ Hierbei führt man zunächst die gleichen Näherungen wie bei der gaußschen Optik aus (Abschnitt 2.1) und betrachtet, dass die z -Abhängigkeit nur schwach ist (periodische Änderung der Amplitude ist deutlich kleiner als die Propagationsstrecke).

3.5.2 Erzeugung eines ultrakurzen Bessel-Strahls durch ein Axicon

Ein Laserpuls mit räumlicher und zeitlicher gaußscher Einhüllenden

$$E_L(0, \rho, t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \exp\left(-\frac{\rho^2}{2w^2}\right) \exp(i\omega_L t) \quad (54)$$

erfährt durch ein Axicon einen Phasenversatz, der von der radialen Koordinate ρ abhängt:

$$T_{ax}(\rho, \omega) = \exp\left(-\frac{\omega}{c} \gamma(\omega) \rho\right) \text{ mit } \gamma(\omega) = \delta [n_{ax}(\omega) - 1] . \quad (55)$$

Die Transmissionsfunktion T_{ax} bekommt durch Materialdispersion eine Frequenzabhängigkeit. Die Geometrie und die Bedeutung der Winkel δ und γ ist in Abb. 22 dargestellt.

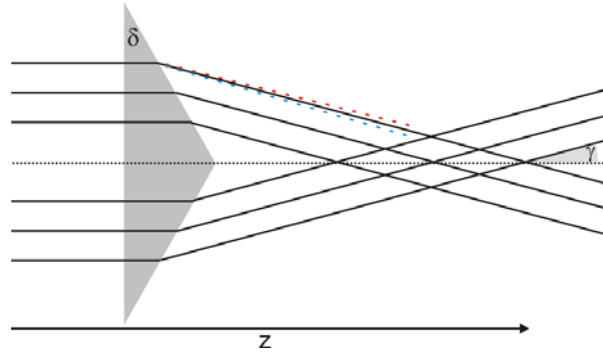


Abb. 22: Erzeugung eines Bessel-Strahls durch ein Axicon mit Apex δ . Durch die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex werden unterschiedliche Wellenlängenkomponenten in unterschiedliche Richtungen gebrochen und der Winkel γ wird ebenfalls wellenlängenabhängig. Die Materialdispersion im Axicon ist von der Radialkoordinate des einfallenden Strahls abhängig.

Mithilfe des Fresnel-Integrals kann man die spektrale Amplitudenverteilung in einer Ebene senkrecht zur Propagationsrichtung z bestimmen:

$$A(r, \omega, z) = -\frac{i\omega E_0}{cz} \exp\left(i\frac{\omega r^2}{2cz}\right) \int_0^{R_{ax}} T_{ax}(\rho, \omega) \exp\left(-\frac{\rho^2}{2w^2}\right) \exp\left(i\frac{\omega \rho^2}{2cz}\right) J_0\left(\frac{\omega \rho r}{cz}\right) \rho d\rho . \quad (56)$$

Die elektrische Feldstärke $E(r, z, t)$ erhält man dann durch Fourier-Transformation aus dem Spektrum. Die Projektion des Wellenvektors k_z entwickelt man dann in eine Taylor-Reihe:

$$k_z(\omega) \approx k_{z,0} + k'_{z,0}(\omega - \omega_L) + \frac{1}{2} k''_{z,0}(\omega - \omega_L)^2 + \frac{1}{6} k'''_{z,0}(\omega - \omega_L)^3 + \dots . \quad (57)$$

Die Gruppengeschwindigkeit ist dann durch das Axicon material- und winkelabhängig

$$v_{gr} = \frac{1}{k'_{z,0}} = \left[\frac{\partial}{\partial \omega} \left(\frac{\omega}{c} \cos \gamma(\omega) \right) \right]^{-1} = \frac{c}{\cos \gamma [1 - \omega \tan \gamma (\partial \gamma / \partial \omega)]} . \quad (58)$$

Beschränkt man sich auf Effekte bis zur 2. Dispersionsordnung erhält man für die Verteilung der elektrischen Feldstärke:

$$E(r, z, t) = E_0 \exp \left[i \left(k_{z,0}(\omega) z - \omega_L t \right) \right] \cdot \left[\frac{A(r, \omega_L, z)}{\left(1 - 2i \frac{k''_{z,0}}{\tau^2} \right)^{1/2}} - \frac{4iT \frac{\partial A}{\partial \omega} \Big|_{\omega_L}}{\tau \left(1 - 2i \frac{k''_{z,0}}{\tau^2} \right)^{3/2}} + \frac{\left(1 - 2i \frac{k''_{z,0}}{\tau^2} - T^2 \right) \frac{\partial^2 A}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega_L}}{\tau^2 \left(1 - 2i \frac{k''_{z,0}}{\tau^2} \right)^{5/2}} \right] \exp \left(\frac{-T^2}{1 - 2i \frac{k''_{z,0}}{\tau^2}} \right). \quad (59)$$

Hierbei verwendet man das mit dem Laserpuls mitbewegte Bezugssystem $T = \frac{t - k'_{z,0} z}{\tau}$ mit

der Normierung auf die Pulsdauer $\tau = \sqrt{2 \ln 2} \cdot \tau_{FWHM}$. Für Femtosekundenpulse muss zusätzlich die dritte Dispersionsordnung berücksichtigt werden. Für die später vorgestellten Experimente ist aber eine Näherung bis zur zweiten Dispersionsordnung ausreichend. Bis hierhin wurde nur betrachtet, dass das Medium nach dem Axicon den Brechungsindex $n = 1$ hat und nur durch das Axicon Dispersion eingeführt wird. Unberücksichtigt blieb bis jetzt Brechungsindex und Länge des Mediums nach dem Axicon. Berücksichtigt man dies zusätzlich, können 3 Phänomene auftreten – Pulsdauerverkürzung, Pulsdauerverlängerung und konstante Pulsdauer – abhängig von Materialdispersion und Apex des Axicons [94].

3.5.3 Axiales Intensitätsprofil

Das räumliche Intensitätsprofil des Bessel-Strahls erhält man aus (56) mit dem Zusammenhang $I = \frac{\varepsilon_0 c E^2}{2}$ im paraxialen Bereich $r < R_{ax}$ [98, 99]:

$$I(r, z) = \left(\frac{\omega_L E_0}{cz} \right)^2 \left| \int_0^{R_{ax}} T_{ax}(\rho, \omega) \exp \left(-\frac{\rho^2}{2w^2} \right) \exp \left(i \frac{\omega_L \rho^2}{2cz} \right) J_0 \left(\frac{\omega_L \rho r}{cz} \right) \rho d\rho \right|^2$$

$$= I_0 \left(4\pi^2 \gamma^2 \frac{z}{\lambda_L} \right) \exp \left[-\frac{2(\gamma z)^2}{w^2} \right] J_0^2 \left(\frac{\omega_L}{c} \gamma r \right) \quad (60)$$

Das axiale Intensitätsprofil erhält man dann für $r \rightarrow 0$:

$$I(0, z) = I_0 \left(4\pi^2 \gamma^2 \frac{z}{\lambda_L} \right) \exp \left[-\frac{2(\gamma z)^2}{w^2} \right]. \quad (61)$$

Man kann leicht ausrechnen, dass es zur Ausbildung einer ausgedehnten Zone hoher Intensität kommt, welche oft als Bereich des linearen Fokus⁷ oder als Bessel-Zone bezeichnet wird. Die

Maximalintensität am Ort $z_{\max} = \frac{w}{2\gamma}$ hängt nur von der Eingangsintensität des Laserpulses I_0

bzw. seinem Strahlradius w und dem Öffnungswinkel des Axicons γ ab:

$$I_{\max} = \frac{2\pi^2}{\lambda} \gamma w \exp(-0.5) I_0. \quad (62)$$

⁷ Diese Analogie zur Rayleigh-Länge des gaußschen Fokus ist dahingehend irreführend, dass beim Bessel-Strahl keine Fokussierung auftritt.

Der Ausdehnung des linearen Fokus $z_{\text{Zone}} \cong 0.8 \frac{w}{\gamma}$ ist dann, analog zur Definition der Rayleigh-Länge, der Bereich, in dem die axiale Intensität $I > 0.5 I_{\text{max}}$ ist. Der Strahldurchmesser der Bessel-Zone kann mit $d \approx 0.766 \frac{\lambda_L}{\gamma}$ abgeschätzt werden.

3.5.4 Phasenanpassung

Zur effizienten Erzeugung eines stimulierten Stokes-Strahls in axialer Richtung in der Geometrie des Bessel-Strahls muss die Phasenanpassungsbedingung für stimulierte Raman-Streuung erfüllt sein.

$$\Delta \vec{k} = 2\vec{k}_P - \vec{k}_{AS} - \vec{k}_S \quad (63)$$

Wird ein Bessel-Strahl als Pump-Strahl verwendet, so ergibt sich eine konische Geometrie. Pump-Strahl und Stokes-Strahl schließen den Winkel γ ein, der durch das verwendete Axicon bestimmt wird (Abb. 23).

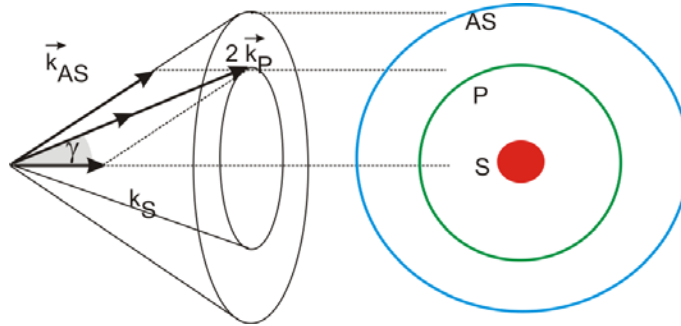


Abb. 23: Phasenanpassung für stimulierte Raman-Streuung in konischer Geometrie.

Da die Phasenanpassungsbedingung kompliziert allgemein zu diskutieren ist, kann man sie für die Erzeugung eines axialen Stokes-Strahls weiter vereinfachen. Dabei nimmt man an, dass der Pump-Laserpuls nicht zu kurz ist und Dispersionseffekte nur bis zur 1. Ordnung berücksichtigt werden. Für die weitere Untersuchung betrachtet man den Unterschied der Gruppengeschwindigkeit (*group velocity mismatch* (GVM)) zwischen Pump-Strahl und Stokes-Strahl in axialer Richtung [100]:

$$\Delta k' = \frac{k'_P}{\cos \gamma} - k'_S = \frac{1 - \frac{\lambda_P}{n_P} \frac{\partial n}{\partial \lambda} \Big|_{\lambda_P}}{\frac{c}{n_P} \cos \gamma} - \frac{1 - \frac{\lambda_S}{n_S} \frac{\partial n}{\partial \lambda} \Big|_{\lambda_S}}{\frac{c}{n_S}}. \quad (64)$$

Als Beispiel soll hier für Stickstoff der Unterschied der Gruppengeschwindigkeit zwischen Pump-Strahl und axialem Stokes-Strahl berechnet werden. Für 800 nm Pumpwellenlänge ergibt sich die Stokes-Wellenlänge bei 983 nm (Tab. 2). Nimmt man weiterhin einen Gasdruck von 1 bar und ein Axicon aus Quarzglas, das eine Kegelöffnung von 0.75° erzeugt, erhält man:

$$\Delta k'(1 \text{ bar N}_2, \gamma = 0.75^\circ) \approx 305 \frac{\text{fs}}{\text{m}}. \quad (65)$$

D.h. Pump-Strahl und Stokes-Strahl sind nach 1 m um 305 fs zeitlich auseinandergefahren. Betrachtet man nun die quasi-statische Länge L_{qs} , in welcher die stimulierte Raman-Streuung

als zeitunabhängig angesehen werden kann, kann man eine Abschätzung für die Pulsdauer des Pump-Strahls treffen.

$$L_{qs} = \frac{\tau}{\Delta k'} \quad (66)$$

Für 5 mm Stahlradius ergibt sich eine Bessel-Zone von 2.5 m, die auch der Länge der verwendeten Gaszelle entspricht. Möchte man über die Länge eine quasi-statische Wechselwirkung, kann man die optimale Pulsdauer für den Pump-Strahl abschätzen:

$$\tau_{opt} \approx L_{Zelle} \cdot \Delta k' = 2.5\text{m} \cdot 305 \frac{\text{fs}}{\text{m}} = 763\text{fs} . \quad (67)$$

Im vorgestellten Experiment werden Laserpulse mit einer minimalen Pulsdauer von 30 fs verwendet und durch Variation des Gitterabstands im Kompressor des Lasers zusätzliche Dispersion eingeführt. Das Spektrum des Laserpulses bleibt also unverändert und die in Abschnitt 3.5.2 diskutierten Dispersionseffekte können eine Rolle spielen.

Für ultrakurze Bessel-Strahlen hoher Intensität muss neben der GVD auch der nichtlineare Brechungsindex berücksichtigt werden [101-103] und somit Effekte wie Selbstphasenmodulation, *Self-Steepening* und Selbstfokussierung, welche sowohl Pump-Strahl als auch Stokes-Strahl beeinflussen können. Folgerichtig ergibt sich für ein einfaches Experiment, bei dem ein Laserpuls benutzt wird um einen Bessel-Strahl zu erzeugen, welcher einen axialen Stokes-Strahl in einem gasförmigen Raman-Medium erzeugt, eine Fülle von verknüpften Parametern, welche in Abb. 24 schematisch dargestellt sind.

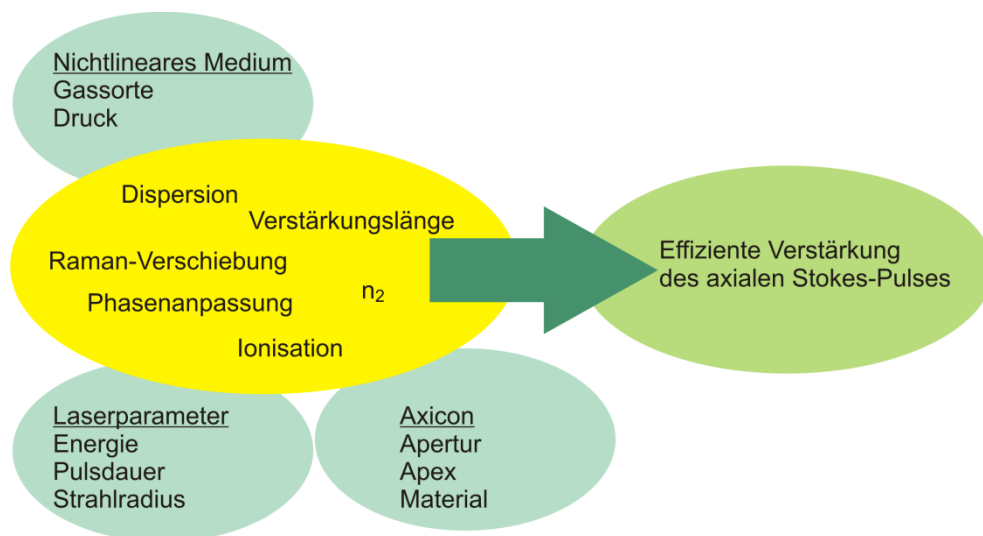


Abb. 24: Anpassungsparameter zur Maximierung eines axialen Stokes-Strahls

Tab. 2: Übersicht über die Frequenzverschiebung Raman-aktiver Gase und die Stokes-Wellenlängen für 800 nm und 1050 nm Wellenlänge des Pumpstrahls.

Molekulares Gas	$\nu_{\text{Raman}} [\text{cm}^{-1}]$	$\lambda_{\text{Stokes},800\text{nm}} [\text{nm}]$	$\lambda_{\text{Stokes},1050\text{nm}} [\text{nm}]$
N ₂	2331	983	1390
O ₂	1556	913	1255
H ₂	4160	1199	1864
SF ₆	775	852	1142
NO ₂	754	851	1140

3.5.5 Verstärkung von Stokes-Strahlen

Durch die Nicht-Kollinearität der Bessel-Geometrie kann Phasenanpassung zwischen Pump- und Stokes-Strahl über eine Länge von mehreren Metern gewährleistet werden (Abb. 23). Zusätzlich ist durch den Strahlengang am Axicon (Abb. 22) eine weitere Näherung der nichtlinearen Optik erfüllt – der Pumpstrahl wird in z – Richtung nicht schwächer (*undepleted pump approximation*). Dies geschieht im Falle eines positiven Unterschieds der Gruppengeschwindigkeiten. Hierbei wird der axiale Stokes-Puls, welcher anfänglich in der abfallenden Flanke des Pump-Pulses erzeugt wird, effektiv verstärkt, da er bei der Propagation durch den Pump-Puls mit der Differenz der Gruppengeschwindigkeiten läuft und somit immer mit einem unverbrauchten Pump-Strahl wechselwirkt [100]. Das Finden eines optimalen Satzes an experimentellen Parametern ist ein iterativer Prozess und orientiert sich an vorherigen experimentellen Arbeiten [104]. Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 25 dargestellt und besteht aus der Kontrolle von Laserparametern (Pulsdauer, Pulsenergie, Strahlradius, Strahldivergenz), Axicon (Material, Apex) und molekularem Medium in der Gaszelle (Gassorte, Druck).

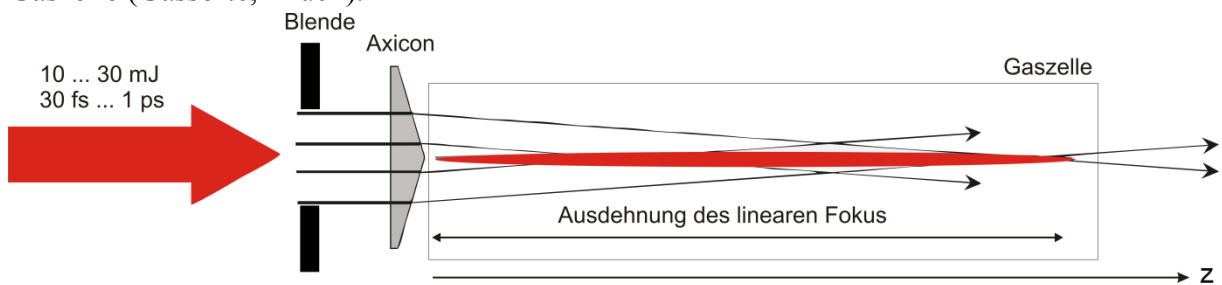


Abb. 25: Experimenteller Aufbau zur Untersuchung von stimulierter Raman-Streuung mit Bessel-Strahlen. Laserpulse mit einstellbarer Energie zwischen 10 mJ und 30 mJ und einstellbarer Pulsdauer zwischen 30 fs und 1 ps werden benutzt um mithilfe eines Axicons Bessel-Strahlen zu erzeugen. Durch den einstellbaren Strahlradius kann die Länge des linearen Fokus eingestellt und an die Länge der Gaszelle angepasst werden. Nicht eingezeichnet ist ein Linsenteleskop zur Verkleinerung des Strahldurchmessers auf etwa 2.5 cm. Durch das Linsenteleskop kann einerseits die Eingangsintensität auf dem Axicon variiert und andererseits eine zusätzliche Divergenz eingeführt werden. Die Gaszelle kann mit verschiedenen Gasen befüllt werden und der Druck zwischen 0 bar und 2 bar variiert werden.

Stimulierte Raman-Streuung wurde für verschiedene Gase im Experiment untersucht (N₂, O₂, SF₆). Die besten Ergebnisse wurden dabei für SF₆ erzielt, welche nachfolgend dargestellt werden. Zunächst wurde die Pulsenergie auf 20 mJ fixiert und die Pulsdauer optimiert (Abb.

26 (a)). Für Pulsdauern unter 500 fs beobachtet man Weißlichterzeugung aufgrund der hohen axialen Intensität und das axiale Ausgangssignal enthält nur wenig Energie aufgrund des Unterschieds der Gruppengeschwindigkeiten. Ab etwa 500 fs wird die Stokes-Komponente im Spektrum sichtbar, welche sich mit zunehmender Pulsdauererhöhung bis etwa 850 fs zunehmend rotverschiebt. Dies liegt daran, dass sich der Anteil der Weißlichterzeugung reduziert und die Blauverschiebung der Zentralwellenlänge des Pump-Strahls aufgehoben wird. Für etwa 850 fs ergibt sich ein Optimum der axialen Stokes-Emission und die Verstärkungslänge wird bestmöglich genutzt. Für längere Pulsdauern kommt es zu einer drastischen Reduktion der axialen Stokes-Emission, da die Verstärkungslänge zu kurz ist bzw. die Intensität im Pump-Puls zu gering ist. Das Absinken der Pump-Intensität beobachtet man ebenfalls, wenn man die Eingangsenergie absenkt (Abb. 26 (b)). Versucht man die Pumpenergie höher als 20 mJ zu wählen, beobachtet man wieder das Einsetzen von Weißlichterzeugung aufgrund der hohen Intensität.

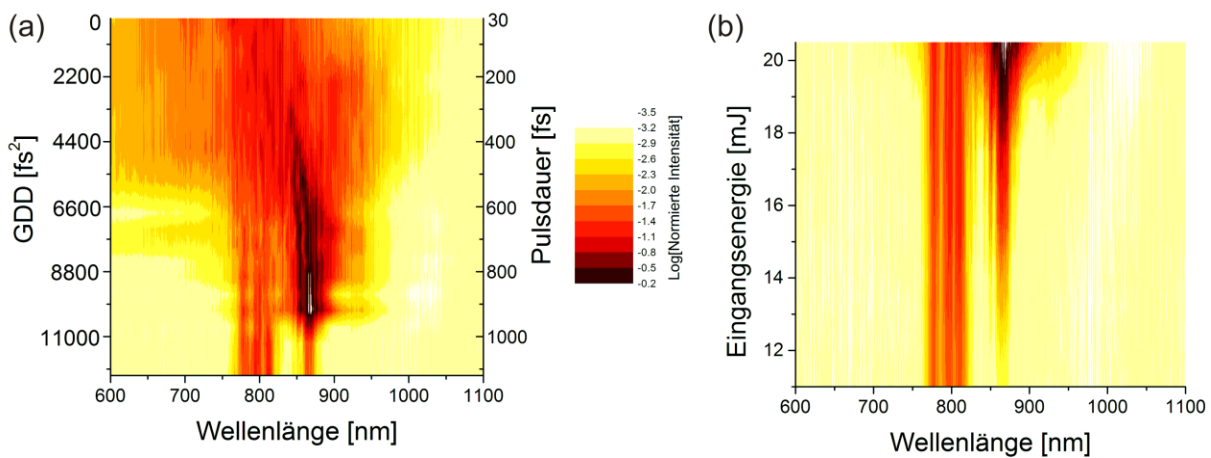


Abb. 26: Optimierung der Laserparameter für stimulierte Raman-Streuung in axialer Richtung in logarithmischer Farbskala. (a) zeigt die Anpassung der Pulsdauer durch lineares Verschieben der Kompressorgitterposition des Lasers für eine feste Pulsenergie von 20 mJ. Für Pulsdauern unter 500 fs dominiert Weißlichterzeugung durch die hohe Intensität. Für längere Pulsdauern wird die Stokes-Komponente sichtbar, welche eine leichte Rotverschiebung zu höheren Pulsdauern aufweist. Ein Optimum wird für 850 fs erreicht. Für längere Pulsdauern ist der Verstärkungsprozess nicht mehr effizient. (b) zeigt die Anpassung der Eingangspulsenergie. Für steigende Pulsenergie erkennt man ein Ansteigen der Stokes-Komponente. Ab 20 mJ setzt Weißlichterzeugung ein.

Insgesamt ist also der Bereich für eine effiziente Verstärkung der axialen Stokes-Komponente bei gleichzeitiger Minimierung der Weißlichterzeugung sehr schmal und für ein gegebenes Axicon und einen Strahldurchmesser für eine Verstärkung auf einer Länge von 2.5m auf ein bestimmtes Paar von Pulsdauer und Pulsenergie festgelegt. Das beste Ergebnis aus Abb. 26 ist in Abb. 27 dargestellt.

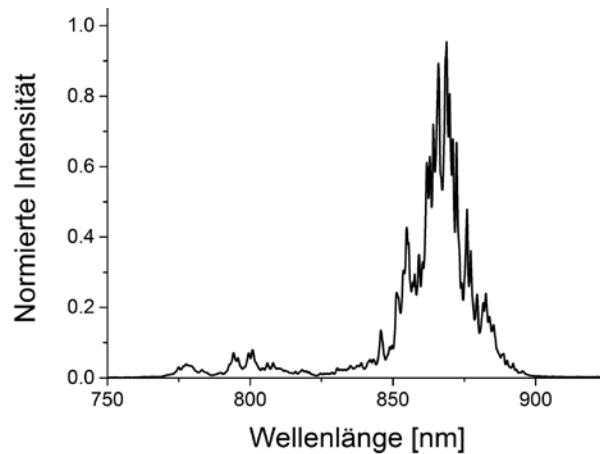


Abb. 27: Axiale Emission einer SF_6 -gefüllten Gaszelle. Ein Laserpuls (20 mJ Pulsenergie, 850 fs Pulsdauer) erzeugt durch ein Axicon (Apex 0.25° , Quarzglas, 2.5 cm Durchmesser) einen Bessel-Strahl, in welchem ein axialer Stokes-Strahl erzeugt wird (900 μJ , 867 nm Zentralwellenlänge, 10 nm FWHM).

Für die Konversionseffizienz von Pump- zu Stokes-Puls in Gasen erhält man typischerweise Werte im einstelligen Prozentbereich und für die in Abb. 27 vorgestellte Messung 4.5%. Man erkennt dabei, dass es noch einen sehr kleinen Weißlichtuntergrund gibt, den man durch Verringerung der Intensität des Pump-Strahls geometrisch reduzieren könnte, allerdings auf Kosten der Konversionseffizienz. Eine Reduzierung des Weißlichtuntergrunds wäre ebenfalls durch nachträgliche spektrale Filterung möglich, geeignete Filter haben zwischen 90% und 95% Transmission.

Betrachtet man das räumliche Profil der axialen Stokes-Emission, stellt man fest, dass dieses fast perfekt kollimierter gaußscher Strahl mit geringem Durchmesser ist. Das in Abb. 28 dargestellte Strahlprofil wurde 4 Meter nach der Gaszelle aufgenommen und besitzt einen Durchmesser ($1/e$ – Weite) von 2 mm. Dieses Strahlprofil ist durch die Erzeugung des Stokes-

Strahls in der Bessel-Zone des Pump-Strahls zu erklären, deren Fresnel-Zahl $F = \frac{d^2}{\lambda L}$ deutlich kleiner als 1 ist. Somit kommt es zur Ausbildung der gaußschen Grundmode (Vgl. Abschnitt 2.1).

Aus der spektralen Bandbreite der Stokes-Emission kann man über Fourier-Transformation eine mögliche minimale Pulsdauer der Emission abschätzen. Für das in Abb. 27 dargestellte Spektrum beträgt sie etwa 110 fs. Nimmt man zunächst an, dass die Stokes-Emission größenordnungsmäßig eine Pulsdauer im Bereich des Pump-Pulses haben wird, so müssten etwa 34000 fs^2 kompensiert werden. Nimmt man ferner an, dass die Kompression gleichmäßig über die 2.5 m lange Bessel-Zone erfolgt, ergibt sich eine GVD von -13.6 fs/mm, die durchaus erreichbar durch geschicktes Management von Dispersion und Nichtlinearität in der Bessel-Zone zu sein scheint (Abschnitt 3.5.2). Z.B. konnte bereits die Kompression eines Gaußpulses innerhalb eines Bessel-Filaments experimentell gezeigt und simuliert werden [103].

Für die hier präsentierten experimentellen Daten wurde die Pulsdauer über die Konversionseffizienz für die Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem 0.7 mm dicken BBO-Kristall auf unter 150 fs abgeschätzt. Für die im nachfolgenden Abschnitt präsentierten Daten wurde Pulsdauer mit einem Autokorrelator gemessen [19] und dabei ergab sich

ebenfalls bei optimierten Verstärkungsbedingungen etwa eine Übereinstimmung zwischen Fourier-Limit (200 fs, 10 nm FWHM bei 1152 nm) und Messung (330 fs).

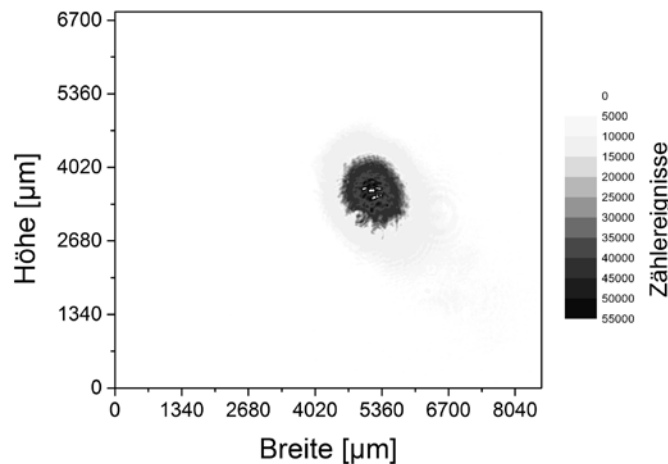


Abb. 28: Strahlprofil der axialen Emission 4 Meter nach der Gaszelle

3.5.6 Seed-Strahl für Laser-Plasma-Verstärker

Betrachtet man die Skalierbarkeit des Konzepts der *Chirped Pulse Amplification* zu höheren Spitzenleistungen bzw. höheren Pulsenergien, so wird diese durch die Zerstörschwellen von Verstärkermaterial und Gitterkompressoren begrenzt, deren Größe sich nicht mit vertretbarem Aufwand weiter steigern lässt [105]. Um dies zu überwinden, wurde ein neues Konzept vorgeschlagen – *Stimulated Raman Backscattering* (SRBS)⁸ – bei dem stimulierte Rückstreuung eines hochintensiven Laserpulses genutzt wird [106]. Es handelt sich dabei um eine Dreiwellenmischung zwischen einem Pumpstrahl, einer von ihm erzeugten Plasmawelle und einem in Gegenrichtung propagierenden Seed-Strahl, welcher im Plasma verstärkt und komprimiert wird. Dabei ist es vorteilhaft einen möglichst intensiven Seed-Strahl mit hoher Pulsenergie zu verwenden, um Plasmainstabilitäten dieses nichtlinearen Prozesses zu minimieren. Hauptschwierigkeit bei der Umsetzung dieses Verstärkungsprozesses ist die spontane Raman-Rückstreuung des Plasmas. Für die Umsetzung des Verstärkungskonzepts sind Neodym-Glas-Laser mit sehr hoher Pulsenergie von besonderem Interesse, da sie einerseits Sub-Pikosekundenpulse und einige hundert Joule Pulsenergie zur Verfügung stellen können⁹. Durch SRBS könnte man einerseits eine hohe Energiekonversion vom Pumpstrahl in den Seed-Strahl erreichen und andererseits sollte eine Selbstkompression auf einige 10 fs möglich sein und es so in die Leistungsklasse der Exawattlaser vorzustoßen [105].

Besonderes Augenmerk liegt bei dem Verstärkungsprozess auf den räumlichen und zeitlichen Eigenschaften des Seed-Strahls, da diese sich auf den verstärkten Strahl übertragen. Durch die Phasenanpassungsbedingung $\omega_{Seed} = \omega_L - \omega_{Plasma}$ bei der Dreiwellenmischung muss der Seed-

⁸ Der Prozess ist deutlich abzugrenzen von stimulierter Raman-Streuung an Molekülen, einer Vierwellenmischung. Manchmal bezeichnet man den Prozess auch als *Backward Raman Amplification* (BRA).

⁹ Diese Daten beziehen sich auf das PHELIX-Lasersystem an der GSI Darmstadt, welches mit kurzen Pulsen (1 kJ bei 20 ns) oder ultrakurzen Pulsen (200 J bei 500 fs) betrieben werden kann. Während andere Neodym-Glas-Laser auch noch höhere Pulsenergien erreichen können, ist die minimale Pulsdauer durch die Bandbreite der Verstärkermaterialien und *Gain-Narrowing* begrenzt.

Strahl zum Pumpstrahl rotverschoben sein. Deshalb wurde analog zu den in Abschnitt 3.5.5 vorgestellten Ergebnissen für 800 nm Wellenlänge ein Experiment am PHELIX-Lasersystem der GSI Darmstadt durchgeführt und dabei verschiedene Gase (Stickstoff, SF_6 , Isobutan) und Axicons (0.5° und 1° Apex-Winkel, Quarzglas, 2 Zoll Durchmesser) untersucht. Dabei sollte die Stokes-Emission aufgrund ihres exzellenten räumlichen Strahlprofils, der räumlichen Stabilität durch Verwendung des Axicons und ihrer fast bandbreitenbegrenzten Pulsdauer sehr gut als Seed-Strahl geeignet sein. Einige der aufgenommenen Spektren sind in Abb. 29 dargestellt. Dabei wurde die Eingangsenergie zwischen 100 mJ und 1.3 J und die Pulsdauer zwischen 1 ps und 30 ps variiert. Der Strahldurchmesser des Laserstrahls wurde durch ein Linsenteleskop an den Durchmesser des Axicons angepasst und ermöglicht zusätzlich das Einfügen einer kleinen Divergenz in der Ebene des Axicons. Ausführliche experimentelle Details finden sich in [19]. Eine vielversprechende Verschiebung wurde für SF_6 erzielt, wobei für 300 mJ Eingangsenergie bei 1053 nm Wellenlänge 8 mJ axiale Emission bei 1152 nm entstanden. Dies entspricht einer Umwandlung von 2.6%, also etwa der Hälfte des bei Titan-Saphir-Lasern beobachteten Wertes. Dies liegt einerseits am Wirkungsquerschnitt für Raman-Streuung und andererseits daran, dass die Laserpulse deutlich schmalbandiger sind. Eine weitere Erhöhung der Pulsenergie bewirkt, dass axial höhere Stokes-Ordnungen sichtbar werden. Dieser Effekt ist unerwünscht, wenn man die axiale Emission als Seed-Stahl verwenden möchte. Für Isobutan beobachtet man eine sehr große spektrale Verschiebung aufgrund der C-H-Schwingungen im Molekül. Durch Auswahl des molekularen Gases bzw. seiner Raman-Verschiebung kann man die Rotverschiebung des Seedstrahls steuern und so an den experimentellen Parameter Plasmadichte beim Verstärkungsprozess anpassen.

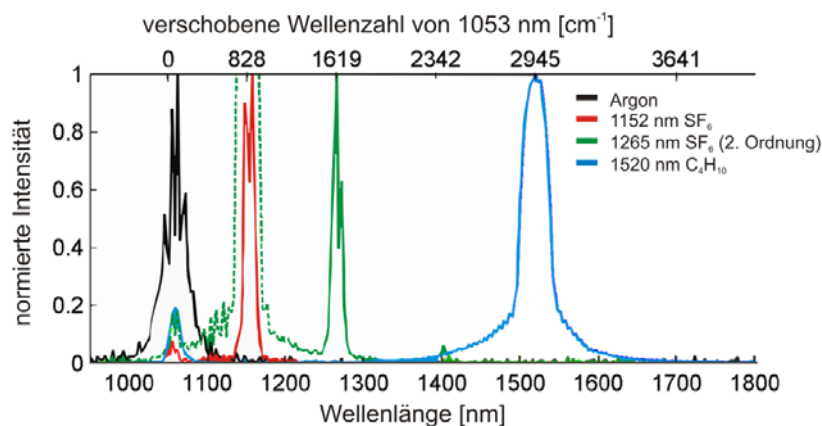


Abb. 29: Spektren der axialen Emission von Argon, SF_6 und C_4H_{10} bei Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen von 1 ps bis 30 ps mit bis zu 1.3 J Pulsenergie.

SRBS ist ein aktuelles Forschungsfeld im theoretischen und experimentellen Bereich, insbesondere beim Auffinden eines Parameterbereichs für optimale Verstärkung. Dabei hat sich in den letzten Jahren gezeigt, dass die experimentell ermittelten Konversionseffizienzen im einstelligen Prozentbereich [107, 108] deutlich von den theoretischen Vorhersagen im Bereich einiger 10 Prozent [106, 109, 110] abweichen. Für weitere Untersuchungen bietet dafür die Erzeugung eines hochenergetischen, rotverschobenen, zeitlich komprimierten Seed-Strahls durch ein Axicon ein einfaches, vielseitig einstellbares Werkzeug.

4. Extreme nichtlineare Optik

Im vorherigen Kapitel wurde nichtlineare Optik unter der Bedingung betrachtet, dass man die Polarisierung in eine Taylorreihe entwickeln kann und die nichtlineare Änderung des Dipolmoments durch im Atom gebundene Elektronen hervorgerufen wird. Für höhere Laserintensitäten kann zusätzlich Ionisation eine wichtige Rolle spielen und die Wellengleichung muss durch auftretende Ströme modifiziert werden:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c_{ph}^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}(\vec{E})}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} = 0 \quad (68)$$

Diese Wellengleichung (68) wird beispielsweise benutzt, um Filamentation zu beschreiben.¹⁰ Wird die Ionisation durch das Laserfeld so stark, dass der dominierende Beitrag des Dipolmoments derjenige zwischen Atomrumpf und freiem Elektron ist, versagt die störungstheoretische Beschreibung über eine Taylorentwicklung der Polarisierung. Experimentell beobachtet man dies bei der Ausbildung eines Plateaus bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen (*high harmonic generation*, HHG) bzw. der Rückstreuung freier Elektronen am Atomrumpf (*above threshold ionization*, ATI), welches ein Widerspruch zum exponentiellen Abklingen in einer Taylorentwicklung ist (Vgl. Abschnitt 3.1). In Abgrenzung zu dieser perturbativen nichtlinearen Optik spricht dann bei HHG und ATI von extremer nichtlinearer Optik.

In diesem Kapitel werden die Erzeugung von und Experimente mit Hohen Harmonischen untersucht. Dabei werden zunächst die zugrundeliegende physikalische Beschreibung und Ansätze zur Steigerung des XUV-Signals Hoher Harmonischer vorgestellt. Darauf aufbauend werden einige Experimente präsentiert, welche schwache Fokussierung, molekulare Medien und modulierte Gasdichten untersuchen. Im zweiten Abschnitt wird die spektrale Formbarkeit von Hohen Harmonischen, die in einer Hohlkernfaser erzeugt werden, vorgestellt und darauf aufbauend ein phasensensitives Messverfahren beschrieben, um die bei der spektralen Verbreiterung aufgeprägte Modulation qualitativ zu bestimmen. Im letzten Abschnitt wird die Entwicklung eines XUV-Detektors basierend auf Reflektivitätsmessungen metallischer Oberflächen mit Teilchendetektoren präsentiert, welcher sehr leicht in typische Experimente mit Hohen Harmonischen implementiert werden kann. Die Charakterisierung des Detektors mit geformten XUV-Pulsen zeigt dann auf, dass dieser geeignet ist, qualitativ der Untergrund des fundamentalen Laserpulses im HHG-Signal zu bestimmen.

4.1 Erzeugung von Hohen Harmonischen

Die Erzeugung von Hohen Harmonischen stellt eine seit Jahrzehnten etablierte, laserbasierte Laborquelle für Strahlung vom ultravioletten bis hin zum weichen Röntgen-Bereich dar [2, 3]. Insbesondere sei hier der Bereich des Wasserfensters erwähnt, welcher für die Untersuchung von biologischen Proben von großer Wichtigkeit ist. Außerdem ermöglicht der HHG-Prozess die Entstehung von Attosekundenpulsen, welche für die zeitaufgelöste Untersuchung von Übergängen in Atomen und Molekülen ermöglichen. Ähnlich wie die Entwicklung von Lasern ist die Entwicklung von HHG-Quellen von deren verschiedenen Einsatzmöglichkeiten

¹⁰ Es ist auch möglich Filamentation ohne Ionisation zu beobachten. Dabei betrachtet man höhere Ordnungen in der Taylorentwicklung der Polarisierung (*high order Kerr effect*, HOKE) [111].

getrieben. In den folgenden Unterabschnitten werden kurz die Grundlagen für HHG erklärt und dann die Weiterentwicklungen vorgestellt. Für eine ausführlichere Einführung wird auch hier wieder auf gängige Literatur zur Erzeugung und Spektroskopie mit Hohen Harmonischen [28, 112, 113] und XUV-Optik im Allgemeinen [32, 114] verwiesen.

4.1.1 Mikroskopische Beschreibung

Die Entstehung von Hohen Harmonischen kann man qualitativ mit einem 3-Stufen-Modell [4, 5] beschreiben. Hierbei wird der HHG-Prozess in jedem Halbzyklus des Laserfeldes ausgelöst, bei dem ein gebundenes Elektron durch Tunneln zunächst freigesetzt und dann im Laserfeld beschleunigt wird. Mit einer kleinen Wahrscheinlichkeit kehrt das Elektron zum Rumpfatom zurück und rekombiniert unter Aussendung eines hochenergetischen Photons. Mit diesem Modell können viele Effekte, z.B. der Cutoff der Harmonischen und kurze bzw. lange Trajektorien erklärt werden (Abb. 30).

Eine wichtige Größe zur Beschreibung der Erzeugung von Hohen Harmonischen ist das ponderomotive Potential U_p , welches die kinetische Energie eines freien Elektrons in einem oszillierenden elektrischen Feld bei Mittelung über eine Periodendauer $T = \frac{2\pi}{\omega_L}$ angibt.

Zunächst kann man die Geschwindigkeit eines freien Elektrons im Laserfeld bestimmen

$$\begin{aligned} E_L = E_0 \cos(\omega_L t + \phi) &= \frac{m_e}{e} \cdot \frac{dv}{dt} \\ \Rightarrow v(t) &= -\frac{eE_0}{\omega m_e} \sin(\omega_L t + \phi) \text{ mit der Annahme } v(0) = 0 \text{ wird } \phi = 0 \end{aligned} \quad (69)$$

und dann die zeitliche Mittelung ausführen

$$\begin{aligned} U_p = \langle E_{kin} \rangle_T &= \frac{1}{T} \int_0^T \frac{1}{2} m_e v^2 dt = \frac{e^2 E_L^2}{2T m_e \omega_L^2} \int_0^T \sin^2(\omega_L t) dt \\ &= \frac{e^2 E_L^2}{2T m_e \omega_L^2} \left[\frac{1}{2} t - \frac{1}{4\omega_L} \sin(2\omega_L t) \right]_0^{T=2\pi/\omega_L} = \frac{e^2 E_L^2}{4m_e \omega_L^2} \propto I \cdot \lambda_L^2. \end{aligned} \quad (70)$$

Das ponderomotive Potential U_p skaliert also linear zur Intensität der verwendeten Laserstrahlung und quadratisch zur Wellenlänge der Laserstrahlung. Für 800 nm Wellenlänge und eine Intensität von $10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ergibt sich $U_p \approx 6 \text{ eV}$. In einem qualitativen, klassischen Modell kann man für ein freigesetztes Elektron im linear polarisierten Laserfeld E_L Geschwindigkeit v und Ort x durch Integration der Bewegungsgleichung $m_e \frac{\partial^2 x}{\partial t^2} = -eE_0 \cos(\omega_L t)$ bestimmen:

$$\begin{aligned} v(t, t_0) &= -\int_{t_0}^t \frac{eE_0}{m_e} \cos(\omega_L t') dt' = -\frac{eE_0}{m_e \omega_L} [\sin(\omega_L t) - \sin(\omega_L t_0)] \\ x(t, t_0) &= \frac{eE_0}{m_e \omega_L} [\cos(\omega_L t) - \cos(\omega_L t_0) + \sin(\omega_L t_0) \cdot (\omega_L t - \omega_L t_0)]. \end{aligned} \quad (71)$$

Hierbei bezeichnet t_0 den Ionisationszeitpunkt. Die kinetische Energie kann dann mithilfe des ponderomotiven Potentials ausgedrückt werden:

$$E_{kin}(t, t_0) = \frac{m_e v^2(t, t_0)}{2} = 2U_p \left[\sin(\omega_L t) - \sin(\omega_L t_0) \right]^2 . \quad (72)$$

In Abb. 30(d) ist die kinetische Energie in Abhängigkeit von t und t_0 dargestellt. Unter Berücksichtigung der Rekombinationsbedingung $x(t, t_0) \stackrel{!}{=} 0$ ergibt sich die maximale Photonenenergie der Harmonischen:

$$E_{max} = q_{max} \cdot \hbar \omega = I_p + 3.17 \cdot U_p . \quad (73)$$

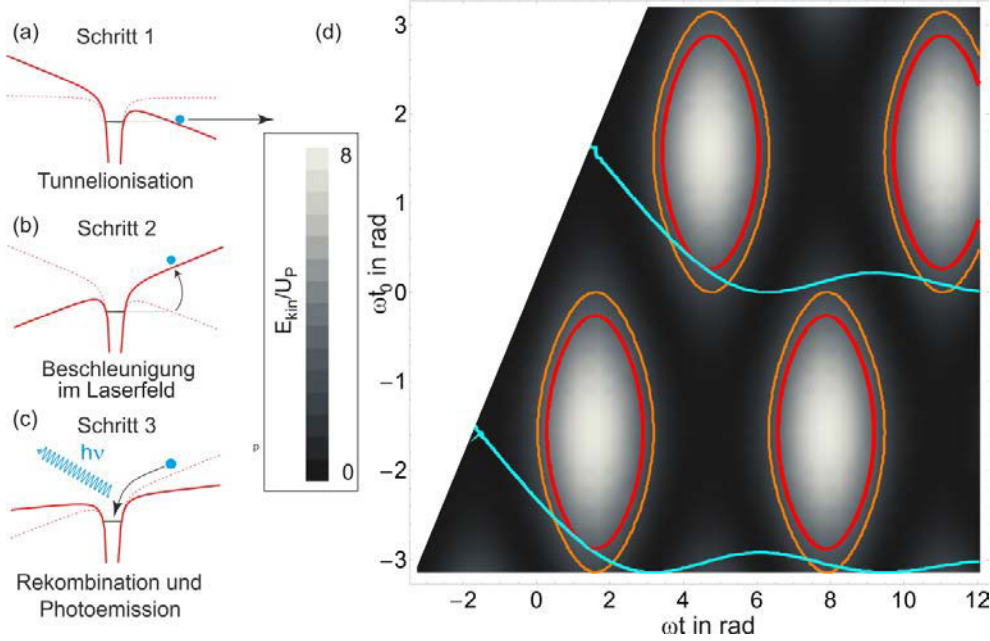


Abb. 30: Links ist das 3-Stufen-Modell dargestellt (a-c). Im ersten Schritt (a) erfolgt die Freisetzung eines Elektrons durch Tunnelionisation zum Zeitpunkt t_0 . Nach der Beschleunigung im Laserfeld (b) kann das Elektron wieder mit dem Atomrumpf unter Aussendung eines Photons rekombinieren (c). Das Graustufenbild (d) zeigt die kinetische Energie der Elektronen in Abhängigkeit von Zeit t und Ionisationszeitpunkt t_0 gemäß Gleichung (72) für den Bereich $t > t_0$. Blau eingefärbt ist die Rekombinationsbedingung $x(t, t_0) = 0$. Rot eingefärbt ist die maximale kinetische Energie $3.17 \cdot U_p$. Man erkennt weiterhin, dass es zwei Lösungen pro optischen Zyklus gibt. Somit werden die Hohen Harmonischen in jedem Halbzyklus des Laserfeldes erzeugt. Als orange Linie ist die Energie $2 \cdot U_p$ eingezeichnet und zeigt, dass diese Energie über eine kurze und eine lange Trajektorie erreicht werden kann.

Für eine quantitative Beschreibung ist dieses Modell nicht geeignet und ein quantenmechanisches Modell [6] muss verwendet werden. Auch hierbei wird nur ein aktives Elektron (*single active electron approximation*, SAE) betrachtet, welches sich im elektrischen Feld des Lasers bewegt und Dipolstrahlung abgibt. Die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung in atomaren Einheiten ($\hbar = e = m_e = c = 1$) setzt sich dann aus einem Anteil des atomaren Potentials $V(\vec{r})$ und einem Anteil der potentiellen Energie des Elektrons im Laserfelds $\vec{E}_L = \vec{E}_0 \cos(\omega_L t)$ zusammen:

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi(\vec{r}, t)\rangle = \left(-\frac{1}{2} \Delta + V(\vec{r}) + \vec{r} \vec{E}_0 \cos(\omega_L t) \right) |\psi(\vec{r}, t)\rangle . \quad (74)$$

Den Erwartungswert des Dipolmoments kann man dann über $\vec{\mu}(t) = \langle \psi(\vec{r}, t) | -\vec{r} | \psi(\vec{r}, t) \rangle$ berechnen und erhält dann mit der klassischen Formel für Dipolabstrahlung das elektrische Feld der Harmonischen. Als Näherung für die Wellenfunktion nimmt man an, dass das starke Laserfeld ein gebundenes Elektron im Grundzustand $|0\rangle$ durch Tunnel direkt in einen Kontinuumszustand $|\vec{v}\rangle$ befördert. Somit kann man eine analytische Lösung der Schrödinger-Gleichung bestimmen:

$$|\psi(\vec{r}, t)\rangle = e^{iI_{pt}} \left(a(t)|0\rangle + \int b(\vec{v}, t) |\vec{v}\rangle d^3\vec{v} \right) \quad (75)$$

Dabei beschreiben $a(t)$ die Amplitude der Wellenfunktion im Grundzustand und $b(\vec{v}, t)$ die Besetzung des Kontinuumszustands. Diese Kontinuumszustände sind Lösungen der Schrödinger-Gleichung für ein freies Elektron (76) und beschreibt die Näherung, dass man für das freie Elektron das atomare Potential nicht mehr berücksichtigt.

$$E_{kin} |\vec{v}\rangle = -\frac{1}{2} \Delta |\vec{v}\rangle \quad (76)$$

Eingesetzt für den Erwartungswert erhält man dann:

$$\vec{\mu}(t) = i \int_0^t dt_0 \int d^3\vec{p} a^*(t) \vec{d}^* [\vec{p} - \vec{A}_L(t_0)] e^{-iS(\vec{p}, t, t_0)} a(t_0) E \cos(\omega_L t_0) \vec{d} [\vec{p} - \vec{A}_L(t_0)] + c.c. \quad (77)$$

Hierbei bezeichnen $\vec{p} = \vec{v} + \vec{A}_L(t)$ den kanonischen Impuls mit dem Vektorpotential A_L und

$$S(\vec{p}, t, t_0) = \int_{t_0}^t dt' \left(\frac{(\vec{p} - \vec{A}_L(t'))^2}{2} + I_p \right) \text{ die quasi-klassische Wirkung}^{11}. \text{ Die Übergangselemente}$$

des Dipoloperators beschreiben den Übergang von Grundzustand in den Kontinuumszustand $\vec{d}(\vec{v}) = \langle \vec{v} | \vec{r} | 0 \rangle$ und den umgekehrten Prozess – die Rekombination – $\vec{d}^*(\vec{v}) = \langle 0 | \vec{r} | \vec{v} \rangle$.

Für die Berechnung des Dipolmoments nach Gleichung (77) kann die Integration über die Impulse \vec{p} durch die Sattelpunkt-Methode durchgeführt werden, was anschaulich der Rekombinationsbedingung im 3-Stufen-Modell entspricht, und erhält¹²:

$$\vec{\mu}(t) = i \int_0^\infty d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} \vec{d}^* [\vec{p}_s(t, \tau) - \vec{A}_L(t)] e^{iS(\vec{p}_s, t, \tau)} \vec{E}_L(t - \tau) \vec{d} [\vec{p}_s(t, \tau) - \vec{A}_L(t)] + c.c. \quad (78)$$

Hierbei sind $\tau = t - t_0$ die Propagationszeit im Laserfeld, $\vec{p}_s(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t \frac{\vec{A}_L(t') dt'}{\tau}$ die stationäre

Phase für den kanonischen Impuls und ε eine infinitesimale Konstante von der Integration um den Sattelpunkt. Für wasserstoffähnliche Atome kann man die Übergangselemente des Dipoloperators für Übergänge ins oder aus dem Kontinuum mit Impuls \vec{k} approximieren als

¹¹ Sie beschreibt auch die Dipolphase bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen. Man kann zeigen, dass die der Dipolphase für lange Trajektorien intensitätsabhängig ist und für kurze Trajektorien fast unabhängig von der Intensität [115].

¹² Eine übersichtliche Herleitung der Formel findet sich in [28] S.223-236.

$$\vec{d}(\vec{k}) = i \frac{2^{7/2} (2I_p)^{5/4}}{\pi} \frac{\vec{k}}{(k^2 + 2I_p)^3}. \quad (79)$$

Für die Berechnung der Dipolspektren gibt es eine Vielzahl fertiger Implementierungen, z.B. HHGmax für MATLAB [116]. In Abb. 31 ist das HHG-Signal für einen Laserpuls mit 30 fs Pulsdauer, der auf $10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ fokussiert wurde, für ein Ionisationspotential von 15.8 eV gezeigt. Dabei wurden zunächst ebene Wellen angenommen und räumliche Effekte vernachlässigt.

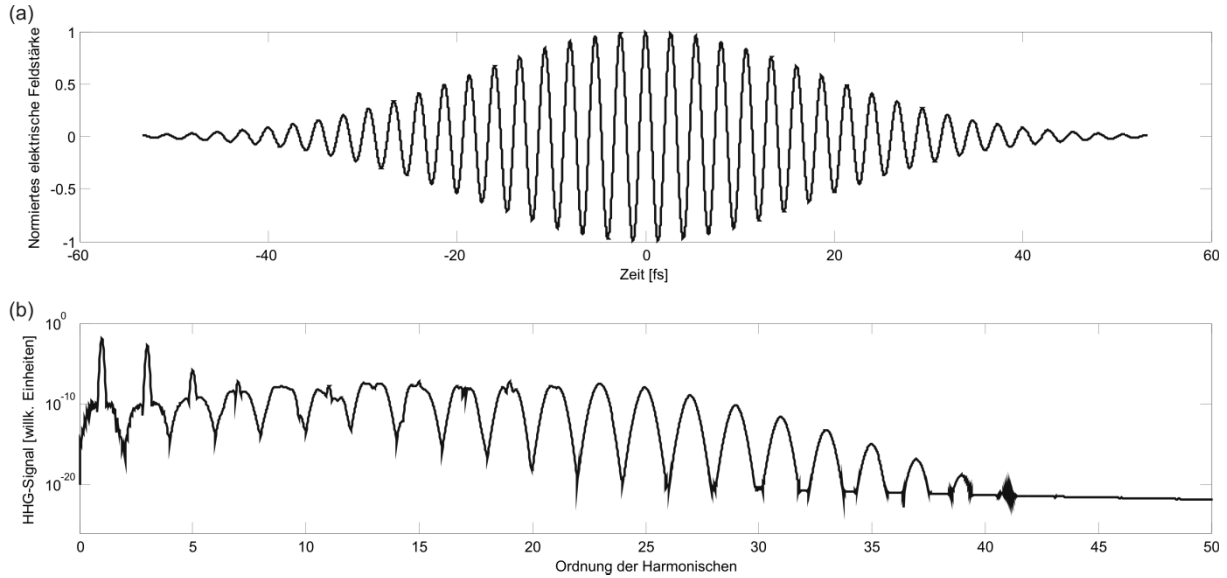


Abb. 31: (a) Ein Laserpuls mit einer Pulsdauer von 30 fs und 800 nm Wellenlänge wird benutzt um Hohe Harmonische zu erzeugen. (b) Berechnetes HHG-Signal für eine Intensität von $10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ und das Ionisationspotential von Argon (15.8 eV). Man erkennt die typische Form eines Spektrums Hoher Harmonischer, welches aus störungstheoretischem Abfall (3. bis 7. Harmonische), einem Plateau (9. bis 23. Harmonische) und einem Cutoff (ab der 25. Harmonischen) besteht.

Wenn man als Strahlprofil eine gaußsche Funktion annimmt, so entstehen im Fokusvolumen Bereiche unterschiedlich hoher Intensität und somit auch unterschiedliche HHG-Signale. Dies ist in Abb. 32 dargestellt. Dabei wurden die Parameter im Vergleich zu Abb. 31 unverändert gelassen, aber ein gaußsches Strahlprofil angenommen und der Strahl auf eine Strahltaile $w_0 = 10 \mu\text{m}$ fokussiert.

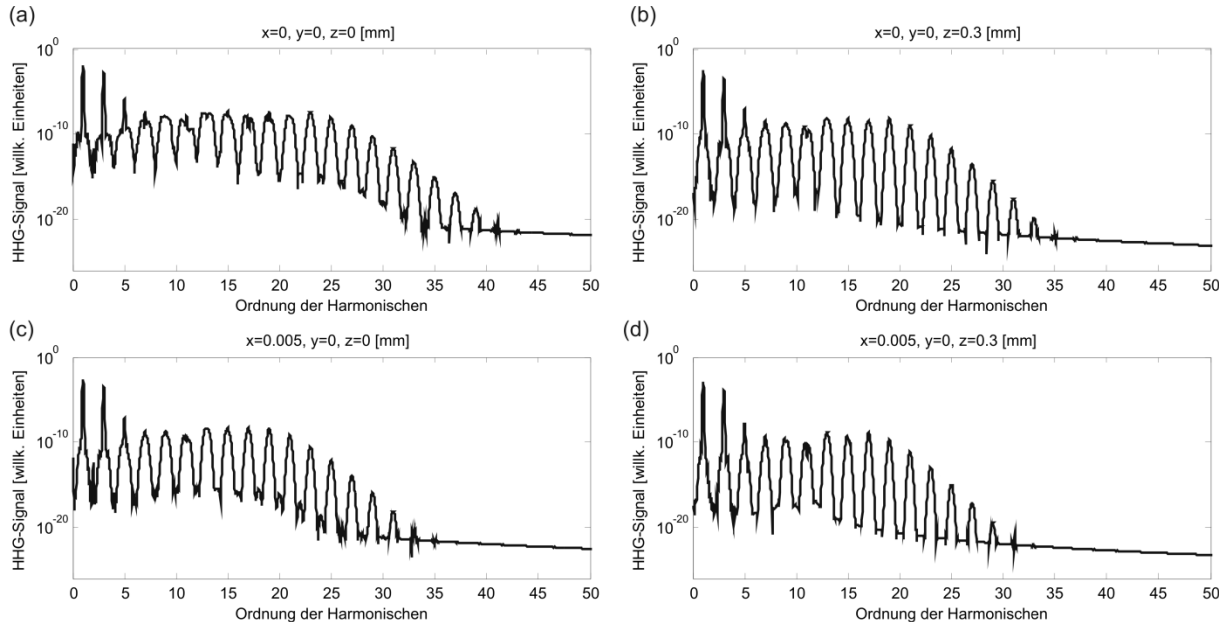


Abb. 32: HHG-Signal für verschiedene Positionen im Fokus eines Laserpulses mit einer Strahltaile von 10 μm . Genau im Fokus (a) ergibt sich die gleiche Intensität wie für ebene Wellen und somit das gleiche HHG-Signal wie in Abb. 31. Verlässt man den Fokusbereich geringfügig, so liegt eine niedrigere Intensität vor und der Cutoff verschiebt sich zu niedrigeren Harmonischen (b-d).

4.1.2 Phasenanpassung

Bis hierher wurde für die Erzeugung von Hohen Harmonischen nur die Wechselwirkung mit einem Elektron eines Atoms mikroskopisch beschrieben. Um makroskopische Frequenzumwandung zu beschreiben, muss der Prozess über einige Millimeter erfolgen und dabei sind größenordnungsmäßig 10^{12} Atome beteiligt. Dabei ist es wichtig den Phasenversatz von erzeugendem Laserpuls und den Harmonischen anzupassen, um konstruktive Interferenz bei der Propagation sicherzustellen. Für eine kollineare Geometrie ist man die Phasenfehlanpassung Δk zwischen erzeugendem Laserpuls und der q -ten Harmonischen:

$$\Delta k = q \cdot k(\omega_L) - k(q \cdot \omega_L) . \quad (80)$$

Für den Fall $\Delta k = 0$ spricht man von Phasenanpassung und es kommt zu konstruktiver Interferenz. Bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen gibt es dabei verschiedene Anteile zu berücksichtigen:

$$\Delta k = \Delta k_{\text{Disp.}} + \Delta k_{\text{Plasma}} + \Delta k_{\text{Geom.}} . \quad (81)$$

Hierbei beschreibt $\Delta k_{\text{Disp.}}$ den Brechungsindexunterschied zwischen erzeugendem Laserpuls und einer Harmonischen im neutralen Gasmedium mit Brechungsindex $n(\omega)$:

$$\Delta k_{\text{Disp.}} = (n(\omega_L) - n(q\omega_L)) \frac{q\omega_L}{c} > 0 . \quad (82)$$

Fernab von Resonanzen kann die Sellmeier-Gleichung zur Bestimmung des Brechungsindexes benutzt werden. Für gasförmige Medien kann man dabei annehmen, dass der Brechungsindex mit der atomaren Dichte N_a skaliert $n(\omega) \approx 1 + \frac{e^2}{2\varepsilon_0 m_e} \frac{N_a}{\omega_r^2 - \omega^2}$. Da der

Brechungsindex für Gase im XUV-Bereich typischerweise kleiner ist als im sichtbaren bzw. nahinfraroten Spektralbereich, ist der Beitrag des neutralen Gases zur Phasenanpassung positiv.

Da bei der Erzeugung von Harmonischen ein Teil des Gases ionisiert wird, muss auch die Plasmadispersion Δk_{plasma} berücksichtigt werden. Wenn Elektronen durch ein externes Feld angeregt werden, beginnt eine kollektive Oszillation mit der Resonanzfrequenz ω_p , der Plasmafrequenz:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 N_e}{\epsilon_0 m_e}} . \quad (83)$$

Diese Oszillation hängt von der Dichte freier Elektronen N_e und führt zu einem Beitrag im Brechungsindex:

$$n_{plasma}(\omega) = \sqrt{1 - \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2} . \quad (84)$$

Für Frequenzen $\omega < \omega_p$ wird der Brechungsindex rein imaginär und das Plasma wird undurchsichtig. Dies ergibt die kritische Dichte $N_{krit.} = \frac{\epsilon_0 m_e \omega^2}{e^2}$. Für typische Bedingungen für die Erzeugung von Hohen Harmonischen ist die Plasmadichte $N_e \ll N_{krit.}(\omega_L)$ und der Brechungsindex kann somit approximiert werden:

$$n_{plasma}(\omega) \approx 1 - \frac{1}{2} \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2 . \quad (85)$$

Damit ergibt der Anteil des Plasmas zur Phasenanpassung:

$$\Delta k_{plasma} = -q \frac{\omega_L}{c} \frac{1}{2} \left(\frac{\omega_p}{\omega_L}\right)^2 + q \frac{\omega_L}{c} \frac{1}{2} \left(\frac{\omega_p}{q\omega_L}\right)^2 = \frac{\omega_p^2}{2c\omega_L} \frac{1-q^2}{q} < 0 . \quad (86)$$

Zur Bestimmung des geometrischen Anteils $\Delta k_{Geom.}$ nimmt man an, dass ein anfänglich kollimierter Laserstrahl mit gaußschem Strahlprofil (TEM₀₀) durch eine Linse fokussiert wird. Dabei wird der Radius des Strahls w bis auf den Fokusradius w_0 verkleinert:

$$w_0 = \frac{f}{\pi w} \lambda_L . \quad (87)$$

Verallgemeinert gilt für die Propagation eines gaußschen Strahls:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z}{z_R}} \text{ mit der Rayleigh-Länge } z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda_L} . \quad (88)$$

Damit der Strahl länger als die Rayleigh-Länge eine genügend hohe Intensität für die Erzeugung von Hohen Harmonischen hat, kann Strahlführung in einer Hohlkernfaser (Innenradius der Hohlkernfaser a , l -te Nullstelle der Bessel-Funktion $J_{n-1}(u_{nl}) = 0$ als geometrischer Faktor für Zylinderwellen im Hohlleiter, $u_{11} = 2.405$) benutzen:

$$k_{Geom.}(\omega) = k_{HCF}(\omega) = -\frac{u_{nl}^2 c}{2a^2 \omega} \quad (89)$$

$$\Delta k_{HCF} = q k_{HCF}(\omega_L) - k_{HCF}(q\omega_L) = \frac{u_{nl}^2 c}{2a^2 \omega_L} \left(\frac{1-q^2}{q}\right) < 0 . \quad (90)$$

Insgesamt ergibt sich also für die Phasenanpassung in einer Hohlkernfaser:

$$\Delta k = (n(\omega_L) - n(q\omega_L)) \frac{q\omega}{c} - \frac{\omega_p^2}{2c\omega_L} \left(\frac{q^2 - 1}{q} \right) - \frac{u_{nl}^2 c}{2a^2 \omega_L} \left(\frac{q^2 - 1}{q} \right). \quad (91)$$

Diese Phasenanpassungsbedingung kann man auch experimentell beobachten. In Abb. 33(a) ist ein typisches HHG-Spektrum aus einer mit Argon gefüllten Hohlkernfaser gezeigt. Man erkennt, dass dem Spektrum durch die Phasenanpassungsbedingung im Vergleich zur mikroskopischen Beschreibung (Abb. 32) eine Einhüllende aufgeprägt wird. Für feste Faser- und Laserparameter kann über den Hintergrunddruck des Gases die atomare Dichte und die Elektronendichte beeinflusst werden. Somit kann man z.B. die Lage des Maximums oder die Breite des Spektrums steuern (Abb. 33(b)).

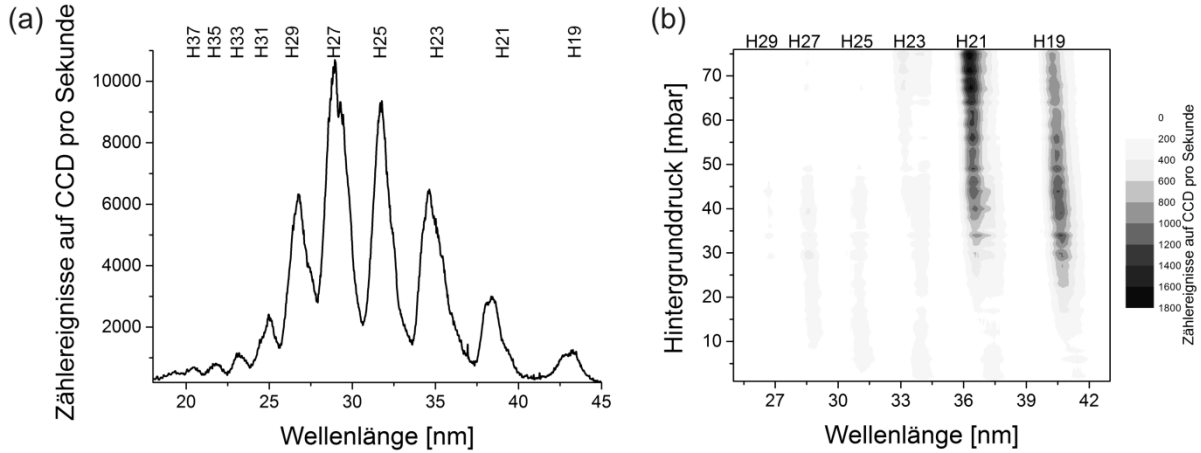


Abb. 33: (a) HHG-Spektrum aus einer mit 10 mbar Argon gefüllten Hohlkernfaser nach spektraler Filterung mit einem 300 nm dicken Aluminiumfilter. (b) HHG-Spektrum in Abhängigkeit des Drucks in der Hohlkernfaser.

Für Hohe Harmonische die in einem freien Fokus erzeugt werden, muss als geometrischer Anteil die Gouy-Phase berücksichtigt werden:

$$k_{Gouy} = \frac{d}{dz} \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \approx \frac{1}{z_R} \quad (92)$$

$$\Delta k_{Gouy} = \frac{1}{z_R} (q - 1). \quad (93)$$

Im freien Fokus spielt die Gouy-Phase typischerweise die entscheidenden Rolle bei der Erzeugung Hoher Harmonischer. Der Beitrag der Gouy-Phase kann kontrolliert werden, indem man die Position von Fokus und Gasmedium aufeinander abstimmt [117]. Eine Variation der axialen Position beeinflusst die Phasenanpassung für kurze und lange Trajektorien bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen. Befindet sich das Gasmedium etwas vor dem Fokus, ist Phasenanpassung nur außerhalb der Propagationsrichtung möglich und das Signal der Harmonischen ist räumlich und zeitlich gestört. Wenn sich das Gasmedium genau im Fokus befindet, so ist die Phasenanpassung meist nicht gut gewährleistet und die Konversionseffizienz gering. Für hohe Konversionseffizienz in Propagationsrichtung muss das Gasmedium kurz hinter dem Fokus positioniert werden und es entsteht ein räumlich und spektral regelmäßiges Signal.

4.1.3 Kohärenzlänge und Absorption in Gasen

Wenn Phasenanpassung gewährleistet ist, addiert sich das Signal der Harmonischen konstruktiv bei der Propagation. Die entsprechende Länge, auf der die konstruktive

Interferenz möglich ist, heißt Kohärenzlänge $L_{koh.} = \frac{\pi}{\Delta k}$. Da es sich um ein gasförmiges

Medium handelt, ist für die Betrachtung die Umformung der Formel in ein Produkt aus Länge und Druck sinnvoll, um konstante Teilchenzahlen zu beschreiben. Hierzu vernachlässigt man den geometrischen Anteil zu Phasenanpassung und betrachtet nur das neutrale Gas und das Plasma, deren Dichten beide mit dem Gasdruck linear skalieren.

$$n(\omega_L) \approx 1 + \frac{e^2}{2\varepsilon_0 m_e} \left(\frac{N_a}{\omega_r^2 - \omega_L^2} - \frac{N_e}{\omega_L^2} \right) = 1 + \frac{e^2 N}{2\varepsilon_0 m_e} \left(\frac{1 - p_{ion}}{\omega_r^2 - \omega_L^2} - \frac{p_{ion}}{\omega_L^2} \right) \quad (94)$$

Nimmt man weiterhin an, dass für die Harmonischen $n(q\omega_L) \approx 1$ gilt und der isochoren Druck $p = \frac{N}{N_0}$ ist, ergibt sich:

$$L_{koh.} = \frac{\pi}{\frac{q\omega_L e^2 N}{2\varepsilon_0 m_e} \left(\frac{1 - p_{ion}}{\omega_r^2 - \omega_L^2} - \frac{p_{ion}}{\omega_L^2} \right)} \quad \text{und} \quad (L \cdot p)_{koh.} = \frac{\pi}{\frac{q\omega_L e^2 N_0}{2\varepsilon_0 m_e} \left(\frac{1 - p_{ion}}{\omega_r^2 - \omega_L^2} - \frac{p_{ion}}{\omega_L^2} \right)}. \quad (95)$$

Hierbei ist $N_0 = 2.5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ die Teilchendichte eines idealen Gases bei Standardbedingungen. Bis hierhin wurde nicht berücksichtigt, dass das Gasmedium die Harmonischen auch wieder absorbieren kann. Die Absorptionslänge $L_{abs} = \frac{1}{N\sigma}$ ist umgekehrt proportional zur Teilchendichte N und zum Absorptionswirkungsquerschnitt σ und definiert als die Länge, bei der die Transmission auf $1/e$ abgefallen ist. Im XUV-Bereich benutzt man die komplexe Darstellung des Brechungsindex

$$n(\omega) = 1 - \delta + i\beta \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{N\sigma}{2\omega c} = \frac{Nr_e \lambda^2}{2\pi} f_2(\omega) \quad (96)$$

und kann den Absorptionsquerschnitt aus Tabellen entnehmen [118].

Ebenso wie die Kohärenzlänge kann man die Absorptionslänge für Gase als Produkt von Länge und Druck darstellen:

$$(L \cdot p)_{abs} = \frac{1}{N_0 \sigma}. \quad (97)$$

Mithilfe des Gasdrucks kann man also sowohl Kohärenzlänge als auch Absorptionslänge steuern. Für die Intensität der q -ten Harmonischen ergibt sich [119]:

$$I_q(L \cdot p) = I_{\max} \frac{1}{1 + 4\pi^2 \left(\frac{(L \cdot p)_{abs}}{(L \cdot p)_{koh.}} \right)^2} \left[1 + e^{-\left(\frac{L \cdot p}{(L \cdot p)_{abs}} \right)} - 2 \cos \left(\frac{\pi L \cdot p}{(L \cdot p)_{koh.}} \right) e^{-\left(\frac{L \cdot p}{2(L \cdot p)_{abs}} \right)} \right]. \quad (98)$$

Diese Gleichung kann für einen festen Druck p und verschiedene Verhältnisse von L_{abs} zu $L_{koh.}$ für Längen in Einheiten der Absorptionslänge L_{abs} parametrisiert werden und ist in Abb. 34 dargestellt.

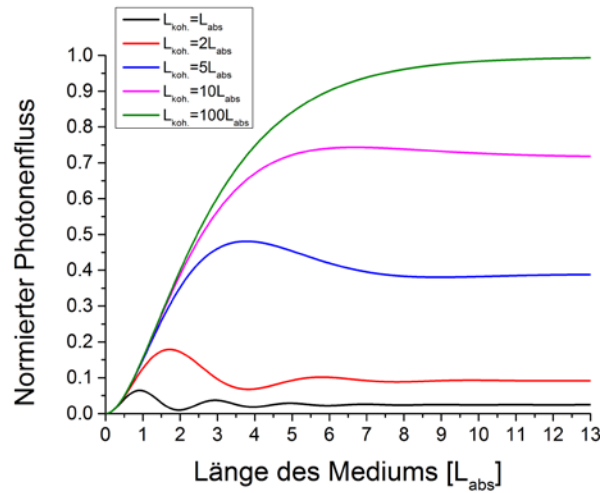


Abb. 34: Abhängigkeit des XUV-Photonenflusses von den Gasparametern.

Man erkennt dabei, dass für die Länge des Gasmediums etwa die Kohärenzlänge gewählt werden sollte und diese deutlich länger als die Absorptionslänge sein sollte. Für sehr hohe Kohärenzlängen beobachtet man ab 10 Absorptionslängen kaum noch einen Anstieg des Signals. Somit ist es nicht notwendig das Gasmedium für die Erzeugung Hoher Harmonischer länger als $10 L_{abs}$ zu wählen. Die Absorption des Mediums kann Tabellen entnommen werden [118] und ist für Argon in Abb. 35(a) dargestellt. Die in den Experimenten zur Pulsformung verwendete Hohlkernfaser (Abschnitt 4.2 bzw. Abb. 33) besitzt eine Länge von 10 cm und einen inneren Durchmesser von 100 μm . Die Hohlkernfaser ist mit zwei gebohrten Gaseinlassöffnungen im Abstand von 4 cm versehen und wird differentiell von Faserein- und Ausgang gepumpt. So entsteht im Inneren der Faser ein 4 cm langer Bereich konstanten Drucks. Für diesen Bereich ist Abb. 35(b) das Produkt von Länge und Druck in Einheiten des Absorptionsprodukts gegeben. Für den Bereich zwischen 20 eV und 45 eV ist dabei der Quotient größer als 10 und die Bedingung $L \geq 10 L_{abs}$ erfüllt. Dies stimmt auch gut mit den experimentellen Beobachtungen in Abb. 33(a) überein. In diesem Zusammenhang spricht man auch von absorptionsbegrenzter HHG.

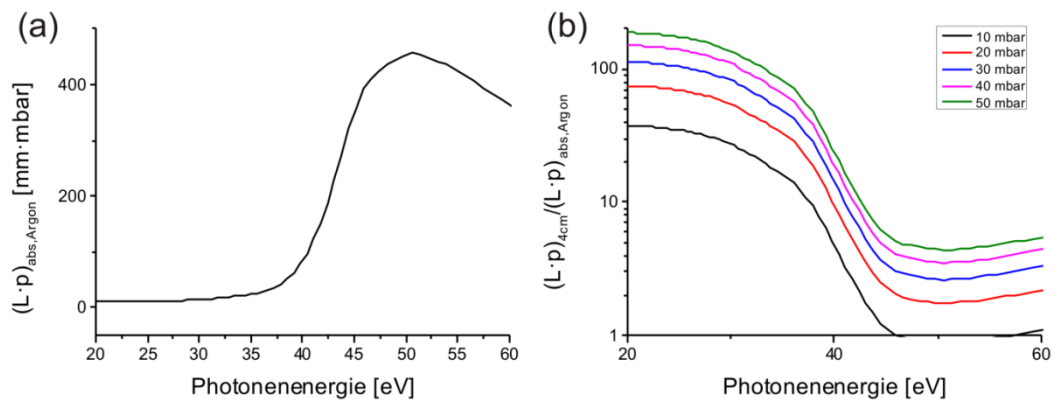


Abb. 35: Absorption der Hohen Harmonischen in Argon. (a) zeigt das Absorptionslängen-Druck-Produkt in Abhängigkeit der Photonenenergie. Dabei fällt auf, dass sich bei Argon das Produkt ab 40 eV stark erhöht. Für ein 4 cm langes Gasmedium ist für den Druckbereich zwischen 10 mbar und 50 mbar das Längen-Druck-Produkt bezogen auf das Absorptionslängen-Druck-Produkt in (b) dargestellt. Ab 40 eV beobachtet man ein Absinken des Quotienten.

Im Experiment versucht man die XUV-Reabsorption durch das verwendete Gas soweit wie möglich zu reduzieren. Dies erfolgt bei einer Hohlkernfaser durch die Bohrung von Gaseinlassöffnungen und differentiell Pumpen von Fasereingangs- und Ausgangsseite. Auf diese Weise kann eine hohe Fasertransmission in der Grundmode gewährleistet, störende Effekte wie Selbstfokussierung bzw. Plasmadefokussierung vermieden [119, 120] und die Stabilität einer HHG-Quelle gesteigert werden [121].

Besondere Bedeutung kommt bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen der nachträglichen spektralen Filterung mit Metallfolienfiltern zu. Diese sind erforderlich um das XUV-Signal der Harmonischen vom Laserstrahl spektral zu trennen. Idealerweise reflektiert ein Metallfilter die Laserstrahlung und transmittiert das XUV-Signal. Für Experimente mit Argon verwendet man meist Aluminiumfilter, deren Transmissionsfunktion in Abb. 36 dargestellt ist. Für 200 nm Foliendicke beträgt die XUV-Transmission etwa 60%. Durch den Herstellungsprozess besitzen diese Filter teilweise Löcher Mikrometerbereich, die für eine erhöhte Transmission der Laserstrahlung sorgen. Zur effektiven spektralen Filterung benutzt man deshalb meistens zwei Filter, um den Effekt dieser Löcher zu minimieren. Typischerweise verwendet man in Experimenten Filterdicken zwischen 200 nm und 300 nm, da diese ein Kompromiss zwischen hoher Transmission, einem stabilen Herstellungsprozess bzw. geringer relativen Streuung der Filterdicke und einer experimentellen Handhabbarkeit sind.

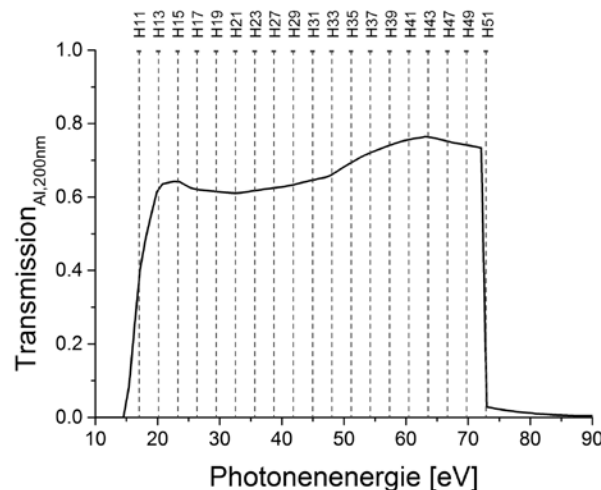


Abb. 36: Transmission eines 200 nm dicken Aluminiumfilters. Die Hohen Harmonischen von 800 nm Wellenlänge sind als grau gestichelte Linien dargestellt. Aluminiumfilter sind für Harmonische von der 11. bis zur 49. Ordnung transparent.

4.1.4 Methoden zur Steigerung des Harmonischen-Signals

Hohe Harmonische stellen eine durchstimmbare Quelle im XUV-Bereich dar, welche zahlreiche Anwendungsfelder besitzt. Diese reichen von physikalischer Grundlagenforschung über Materialwissenschaft und Chemie bis zu Biologie und Medizin. Von besonderer Bedeutung ist hierbei die Silizium-L-Kante bei 99 eV für die Untersuchung von Halbleiterbauelementen und das Wasserfenster zwischen den K-Absorptionskanten von Kohlenstoff (284 eV) und Sauerstoff (543 eV) zur Untersuchung organischer Proben. Dabei ist die Untersuchung mit Harmonischen nicht allein auf Spektroskopie beschränkt, sondern es entstehen auch zunehmend bildgebende Anwendungen [122, 123]. Hauptaugenmerk bei der Optimierung des XUV-Signals liegt dabei hauptsächlich in wohldefinierten Bedingungen des

erzeugenden Laserfeldes [124, 125], da zwei Skalierungsgesetze für die Erzeugung von Hohen Harmonischen direkt mit Laserparametern verknüpft sind – die maximale Photonenenergie $\hbar\omega_{\max}$ und die Konversionseffizienz η :

$$\hbar\omega_{\max} = q_{\max} \cdot \hbar\omega_L = I_p + 3.17 \cdot I \cdot \lambda_L^2 \quad \eta(\lambda_L) \propto \lambda_L^{-6.5} \quad (99)$$

Für eine gegebene Laserintensität sollte also die Wellenlänge so groß wie möglich gewählt werden, um die höchste Photonenenergie zu erzielen. Gleichzeitig sinkt dabei aber die Konversionseffizienz. Beide Gleichungen beschreiben zunächst einmal nur die in Abschnitt 4.1.1 beschriebene Wechselwirkung mit einem einzelnen Atom, aber deuten bereits an, dass es ein Kompromiss für die geeignete Wahl der Wellenlänge gefunden werden muss. Berücksichtigt man zusätzlich Phasenanpassung, wird die Optimierung der Laserparameter noch schwieriger. Höhere Laserintensitäten bewirken nicht nur höhere Photonenenergien, sondern bewirken auch ein Absinken der Konversionseffizienz, da zu starke Ionisation einsetzt und Phasenanpassung verhindert bzw. eine hohe Dichte freier Elektronen eine Defokussierung des Lasers bewirkt und es so zu einem Absinken der Intensität kommt. Bei einer gegebenen Wellenlänge ist es deshalb vorrangig wichtig, die Pulsdauer so kurz wie möglich zu wählen. Meist erzielt man dies dadurch, dass man Laserpulse aus Laserverstärkern spektral verbreitert und anschließend bestmöglich komprimiert (Abschnitt 3.4.1).

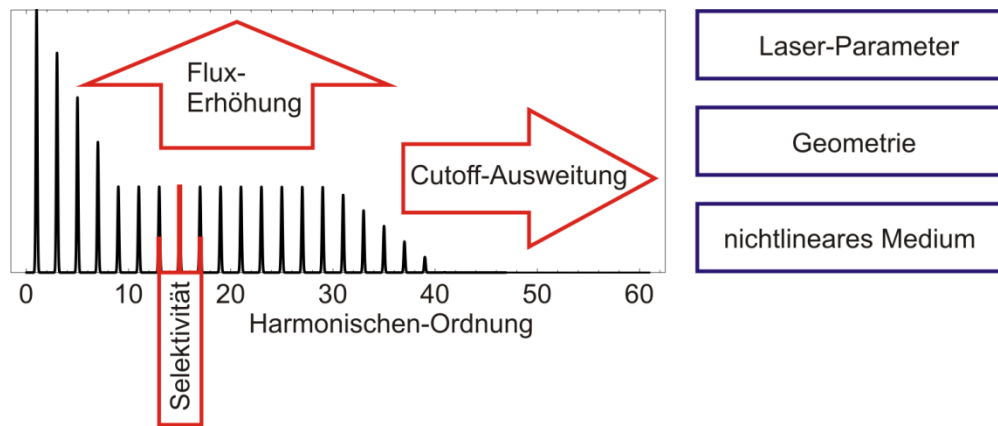


Abb. 37: Zielstellungen bei der Optimierung einer HHG-Quelle.

Eine Übersicht über mögliche Optimierungsansätze für eine HHG-Quelle je nach Anwendung gibt Abb. 37. Als freie Parameter stehen Laser-Parameter (Wellenlänge, Pulsdauer, Pulsenergie, Pulswiederholrate), die Geometrie der Wechselwirkung (freier gaußscher Fokus, Hohlkernfaser, starke oder schwache Fokussierung) und das nichtlineare Medium (atomares oder molekulares Gas, Gasmische) zur Verfügung.

Die Ausweitung des Cutoffs ist z.B. durch die Verwendung von sehr kurzen Pulsen bei 800 nm Wellenlänge möglich [126-128], um Dispersionseffekte bei der Pulspropagation im nichtlinearen Medium zu nutzen. Eine andere Möglichkeit ist die Verwendung von Laserpulsen mit längeren Wellenlängen [129, 130], um so das ponderomotive Potential zu erhöhen.

Bildgebende Anwendungen erfordern meist monochromatische Beleuchtung. Dies kann man prinzipiell durch spektrale Filterung erreichen [131]. Allerdings ermöglicht die Erzeugung von Hohen Harmonischen in einer Hohlkernfaser auch die Selektion einzelner Harmonischer durch zeitliche Pulsformung des Laserpulses ([57, 72, 132] und Abschnitt 4.2). Die Benutzung einer gasgefüllten Hohlkernfaser bietet zwei Vorteile. Einerseits ist die

Interaktionslänge größer und andererseits ist die räumliche Stabilität des Ausgangssignals höher. Dabei wird die Laserstrahlung in geführte Wellenleitermoden überführt anstelle des gaußschen Fokus. Allerdings ist dieser Aufbau auch anfälliger für andere nichtlineare Effekte, die die Propagation der Eingangspulse beeinflussen. Diese könnten z.B. ionisationsverursachte spektrale Verbreiterung und plasmainduzierte Brechzahländerung sein, welche zu Selbstkompression des Laserpulses führen können.¹³ Ebenso könnte der intensitätsabhängige Brechungsindex die Wellenfronten der geführten Fasermode beeinflussen [121].

In den folgenden Abschnitten werden einige experimentelle Ergebnisse zur Steigerung des XUV-Signals Hoher Harmonischer vorgestellt.

4.1.5 Wechselwirkungsgeometrien für schwache Fokussierung

Die Erzeugung von Hohen Harmonischen ist in vielerlei Hinsicht durch Laserparameter begrenzt. Einerseits müssen genügend hohe Intensitäten für die Erzeugung freier Elektronen durch Tunnelionisation zur Verfügung stehen, andererseits führen zu hohe Intensitäten zur Sättigung der Ionisation. Um HHG auch an Terawatt-Systemen nutzen zu können, müssen lange Brennweiten verwendet werden, um den für HHG günstigen Intensitätsbereich zu treffen [133]. Mit Erhöhung der Brennweite auf einige Meter erhöht sich auch die Rayleigh-Länge auf Zentimeter und somit die nutzbare Länge für HHG. Allerdings muss eine entsprechende Gasdichte über den Bereich der halben Rayleigh-Länge zur Verfügung stehen. Für die Erzeugung von Hohen Harmonischen bei hohen Pulsenergien und schwacher Fokussierung wurden als Wechselwirkungsgeometrien ein Nickelröhrchen, eine Überschallgasdüse und eine Gaszelle untersucht (Abb. 38). Als nichtlineares Medium wurde dabei Neon verwendet. Die für das Experiment benutzte Brennweite von 4 m ist durch die Abmessungen des Laserlabors begrenzt. Während der Weg zwischen Fokussieroptik und Fokus durch Spiegel in gewissen Grenzen geschickt gefaltet werden kann, so ist dies nach dem Fokus für das XUV-Signal nicht möglich. Erst nach der Brennweite der Linse können Laserstrahl und XUV-Signal durch spektrale Filterung getrennt werden.

Für jede Wechselwirkungsgeometrie wurde zunächst versucht das Signal der Hohen Harmonischen zu optimieren. Als Freiheitsgrade standen dafür die Blendenöffnung, Position des Gasmediums relativ zum Fokus und der Gashintergrunddruck zu Verfügung. Um die Gaslast in der Vakuumkammer nicht zu groß werden zu lassen wurde das Gas mit einem Ventil geschaltet. Der Öffnungszeitpunkt und die Öffnungsdauer wurden auf das Signal des Laserpulses angepasst und auf ein stabiles HHG-Signal optimiert. Nach den Optimierungsschritten wurde das HHG-Signal in Abhängigkeit des Gasdrucks gemessen und die Ergebnisse sind in Abb. 39 dargestellt.¹⁴

¹³ Hierbei ist allerdings zu beachten, dass die charakteristischen Längenskalen für Selbstphasenmodulation bzw. *Self Steepening* üblicherweise im Bereich von einigen Metern und die HHG-Interaktionslänge im Bereich von Zentimetern liegt. Daher sind diese Effekte für die typischen experimentellen Bedingungen vernachlässigbar.

¹⁴ Durch weitere XUV-Diagnostik im Aufbau war es möglich das absolute Signal einer einzelnen Harmonischen zu messen und durch Umrechnung den absoluten Photonenfluss der einzelnen Harmonischen im XUV-Spektrum zu bestimmen.

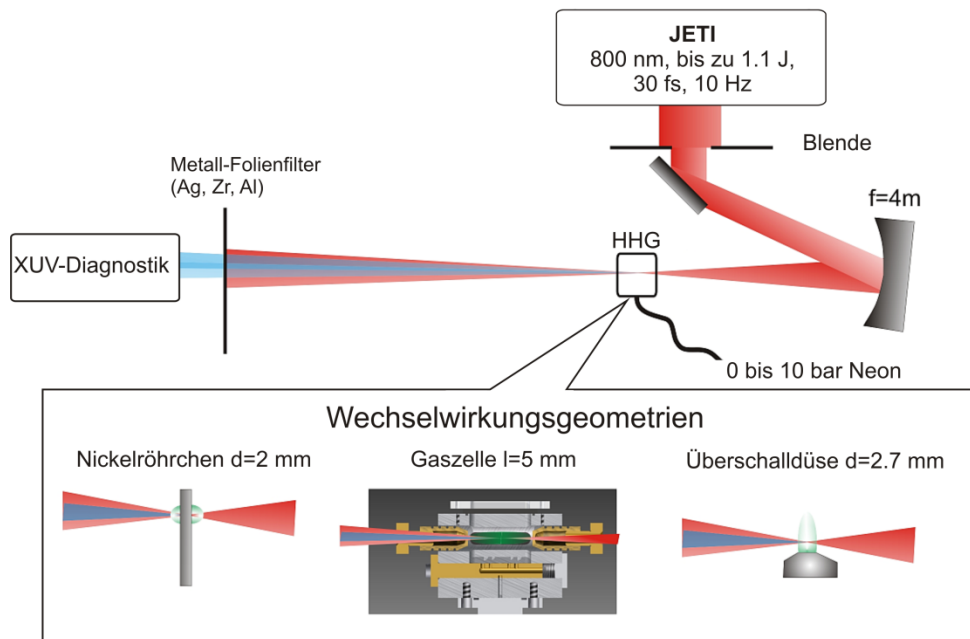


Abb. 38: Experimenteller Aufbau zur Untersuchung verschiedener Wechselwirkungsgeometrien zur Erzeugung von Hohen Harmonischen bei schwacher Fokussierung. Laserpulse mit einer Pulsdauer von 30 fs werden mit einem sphärischen Spiegel auf einen Durchmesser von etwa 100 μm fokussiert. Dazu werden etwa 2 cm des Laserstrahls ausgeschnitten und etwa 35 mJ verwendet, um eine Intensität von $6 \cdot 10^{15} \text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ im Vakuum zu erreichen. Der Gasdruck und die Position des nichtlinearen Mediums relativ zum Fokus können angepasst werden, um das Harmonischen-Signal zu optimieren. Nach der spektralen Filterung können das XUV-Spektrum und das XUV-Strahlprofil gemessen werden.

Für die Erzeugung von Hohen Harmonischen mit einem freien Fokus verwendet man typischerweise Nickelröhrchen um eine homogene Gasdichte zu erreichen. Wenn man die Öffnungen für den Laserstrahl und die Harmonischen mit dem Laser selbst bohrt, so werden diese Öffnungen optimal an die Fokussierungsgeometrie angepasst und erlauben relativ hohe Gasdichten bei minimierter Gaslast für die Vakuumkammer. In Propagationsrichtung des Laserstrahls kommt es somit zur Gasausströmung und zu einer Abnahme der Gasdichte zu beiden Seiten des Nickelröhrchens. In Abb. 39(a) kann man dies auch am gemessenen Signal sehen. Schon für niedrige Hintergründrücke beobachtet man ein stabiles XUV-Signal und im Bereich von 1.5 bar bis 2 bar erhält man den höchsten Photonenfluss.

Für die Gaszelle wurde der Bereich konstanten Druck auf 5 mm angepasst, was etwa der halben Rayleigh-Länge entspricht. In Abb. 39(b) erkennt man die Ausbildung eines stabilen XUV-Signals im Bereich zwischen 3 bar und 6 bar Hintergründruck. Im Vergleich zum Nickelröhrchen ist der Gesamtphotonenfluss geringer, allerdings kann man im Bereich zwischen 100 eV und 110 eV einen deutlich erhöhten Photonenfluss beobachten. In diesem Bereich ist die Phasenanpassung besonders gut gewährleistet. Interessant ist die Geometrie der Gaszelle für die gewählten Parameter zur Untersuchung von Halbleitern (Si-L-Kante 99 eV). Im Vergleich zum Nickelröhrchen kommt es ungefähr zu einer Verdopplung des Photonenflusses im Bereich zwischen 100 eV und 110 eV.

Eine Überschalldüse bietet ein scharfes, räumlich abgegrenztes Gasdichteprofil. In Abb. 39(c) erkennt man, deshalb eine Verschiebung des Cutoffs, da Volumeneffekte durch den Laserfokus bzw. inhomogene Gasdichten reduziert werden bzw. eine bessere Anpassung der Gasdüse an den Laserfokus zur Optimierung der Phasenanpassung möglich ist. Als zusätzlicher Freiheitsgrad tritt die Position des Laserfokus über der Düse auf, welche linear

die Gasdichte beeinflusst. Damit es zur Ausbildung eines Überschallprofils kommt müssen Hintergrunddruck des Gases, Ventil und Form der Düse abgestimmt werden. Zwischen 3 bar und 7 bar beobachtet man ein stabiles XUV-Signal. Im Vergleich zum Nickelröhrchen ist der Photonenfluss etwas geringer. Aufgrund des räumlich scharfen Gasdichteprofiles beobachtet man für die Überschalldüse die deutlichste Blauverschiebung der Harmonischen mit steigendem Gasdruck bzw. steigender Plasmadichte. Diese Einstellbarkeit der Wellenlänge der Harmonischen kann vorteilhaft sein, wenn man beispielsweise für XUV-Bildgebung monochromatische Beleuchtung benötigt und durch spektrale Filterung nur den Bereich einer einzelnen Harmonischen nutzen will.

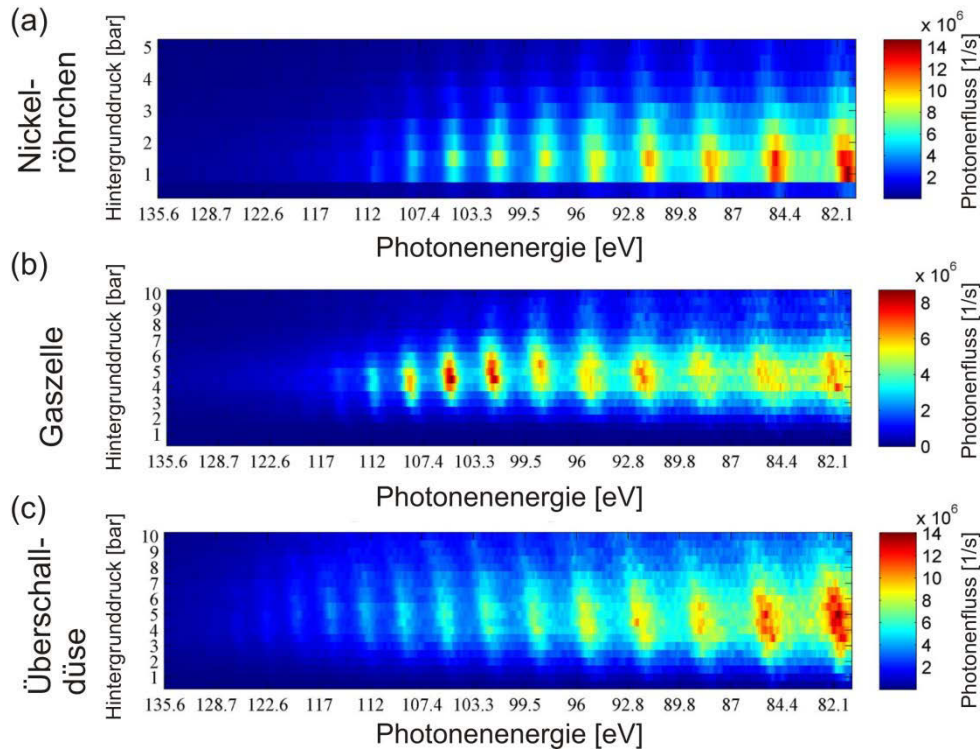


Abb. 39: Vergleich des HHG-Signals für 3 unterschiedliche Wechselwirkungsgeometrien. Zur Erzeugung von Hohen Harmonischen wurde eine Intensität von $6 \cdot 10^{15} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ verwendet und Neon als nichtlineares Medium verwendet. Die Position von Laserfokus und Gasmedium wurde jeweils optimiert und dann das HHG-Signal in Abhängigkeit des Drucks bestimmt. (a) zeigt das Signal eines mit einer gepulsten Düse betriebenen Nickelröhrchens. Man erkennt bei Drücken von 1.5 bar das stärkste HHG-Signal, welches eher ausgeprägt für niedrigere Harmonische ist. Die Resultate für die Gaszelle sind in (b) dargestellt. Im Vergleich zu Nickelröhrchen ist das absolute Signal niedriger. Allerdings sieht man im Bereich zwischen 100 eV und 110 eV ein sehr stark ausgeprägtes Signal im Vergleich zu den anderen Harmonischen. Die Überschalldüse (c) zeigt ein ähnliches Signal wie das Nickelröhrchen. Allerdings sind einige höhere Ordnungen im Vergleich zum Nickelröhrchen sichtbar.

Wenn man die Intensität des fokussierten Laserpulses betrachtet, so ergibt sich für 50 mJ Pulsenergie, 1 cm Rayleigh-Länge, 2.5 cm bis 3 cm Blendenöffnung, 30 fs Pulsdauer eine Intensität von etwa $6 \cdot 10^{15} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ im Vakuum. Vergleicht man dies mit den beobachteten XUV-Photonen und berechnet mit dem Cutoff-Gesetz (73) die Intensität, ergeben sich etwa $6 \cdot 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Im Experiment kommt es also durch substantielle Ionisation Neons zu einer hohen Plasmadichte, so dass es zu einer effektiven Intensitätsabsenkung bzw. Verschlechterung der Phasen Anpassung kommt¹⁵. Betrachtet man das Produkt aus Länge und

¹⁵ Einerseits wirkt eine Plasmadichte defokussierend, was eine Absenkung der Intensität bewirkt. Ist das Gasmedium schon durch die steigende Pulsflanke komplett einfach ionisiert, so kann das zeitliche

Druck für alle Geometrien und setzt es ins Verhältnis zur Absorption, erkennt man substanzielle Unterschiede zwischen den drei Geometrien (Abb. 40). Das Verhältnis sollte etwa 10 sein und man erkennt, dass dies für das Nickelröhrchen bei Drücken im Bereich von 1 bar bis 2 bar gegeben ist, was auch gut mit den Beobachtungen in Abb. 39(a) übereinstimmt. Von höherem Druck kann man nicht profitieren, da dann die Absorptionsverluste überwiegen. Ähnlich verhält es sich für die Überschalldüse, die auch bei niedrigen Drücken ein vorteilhaftes Verhältnis aufweist. Allerdings stimmt dies nicht mit der Beobachtung in Abb. 39(c) überein. Hier beobachtet man das stärkste XUV-Signal bei 5 bar. Zur Erklärung muss man den erforderlichen Druck zur Ausbildung eines stabilen Überschallprofils berücksichtigen und die Gasdichteabhängigkeit über der Düsenöffnung¹⁶. Die reale Gasdichte im Experiment ist also geringer als die angenommene Gasdichte. Die Gaszelle besteht aus einem Ventilanschluss und Diffusoren, um eine homogene Gasdichte zu generieren. Dabei wurde das gleiche Ventil benutzt wie für die Überschalldüse. Somit gelten die gleichen Einschränkungen bezüglich der Gasdichte wie für die Überschalldüse. Die Berechnung des Längen-Druck-Produkts überschätzt also den realen Gasdruck im Experiment. Durch die Diffusoren kommt zusätzlich zu einer Reduktion der Gasdichte. In Abb. 39(b) erkennt man dies an der schwächer ausgeprägten Blauverschiebung im Vergleich zur Überschalldüse.

Für die gleichen experimentellen Bedingungen wurde auch Helium untersucht. Dabei wird der XUV-Photonenfluss etwa um eine Größenordnung abgesenkt und der Cutoff verschiebt sich um etwa 35 eV. Dies ist durch das höhere Ionisationspotential von Helium zu erklären, was zu einer niedrigeren Plasmadichte führt. Rechnet man aus der Cutoff-Position von etwa 145 eV auf die Intensität zurück, ergibt sich $7 \cdot 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Hier kann also ein höherer Anteil des Hauptpulses genutzt werden. Jedoch wird auch hier nicht die gesamte Pulsenergie, sondern nur die ansteigende Flanke zur Erzeugung von Hohen Harmonischen genutzt. Die verwendete Pulsenergie von 35 mJ ist also für die Fokussierung mit 4 Metern Brennweite noch zu hoch. Eine Erhöhung der Pulsdauer zur Verminderung der Intensität sorgte für eine Abschwächung des XUV-Signals in Bezug auf Photonenfluss und Cutoff.

Insgesamt zeigt sich, dass es sehr anspruchsvoll ist, HHG-Experimente bei etwa 100 eV bei hohen Pulsenergien durchzuführen. Experimentell erweisen sich Nickelröhrchen und Gaszelle als sehr gut geeignet, um einige 10^6 Photonen pro Laserpuls in einem 1%-Bandbreitenbereich bei Photonenenergien um 100 eV zu erzeugen. Allerdings musste die Pulswiederholrate des Lasers auf 1 Hz reduziert aufgrund der Gaslast für die Turbomolekularpumpen reduziert werden. Die Konversionseffizienz beträgt dann etwa $5 \cdot 10^{-9}$, was auch mit anderen Experimenten mit Gaszellen und hohen Pulsenergien übereinstimmt [135, 136]. Für spektroskopische Anwendungen in Einzelschussmessungen sind diese Photonenzahlen für die meisten Fälle ausreichend. Im Fall von XUV-Bildgebung ohne Zeitauflösung wird die Messdauer nur durch die Gesamtzahl der Photonen bestimmt. Hier wirkt sich dann die

Intensitätsmaximum des Pulses nicht mehr neutrales Gas ionisieren. Die Harmonischen werden also hauptsächlich an der Plusflanke erzeugt. Durch eine steigende Plasmadichte verringert sich auch die Kohärenzlänge und somit kann die Gesamtlänge des Gasmediums nicht für die konstruktive Überlagerung der Harmonischen genutzt werden und Absorptionsverluste überwiegen.

¹⁶ Eine Überschalldüse bildet ein homogenes Flat-Top-Gasdichteprofil bis zu einer gewissen Höhe, etwa dem Öffnungsdurchmesser, aus [134].

niedrige Pulswiederholrate des verwendeten Lasersystems negativ aus. Typischerweise verwendet man dann starke Fokussierung und niedrige Pulsenergien von Lasern mit hoher Pulswiederholrate [137, 138].

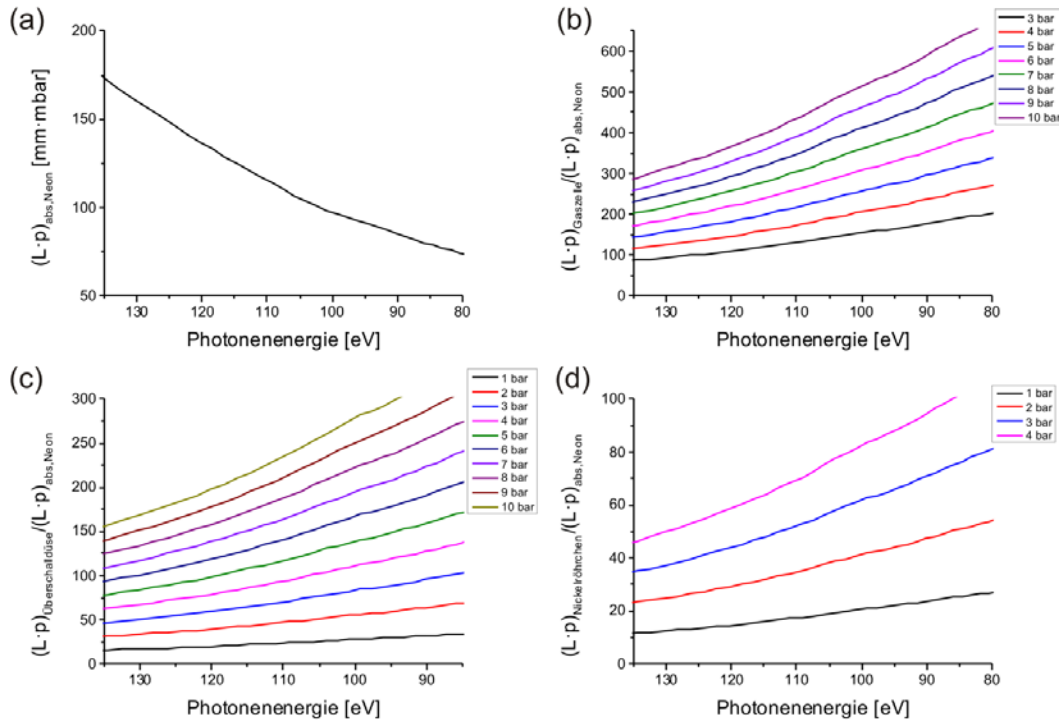


Abb. 40: Absorption der Hohen Harmonischen in Neon. (a) zeigt das Absorptionslängen-Druck-Produkt in Abhängigkeit der Photonenenergie. Dabei fällt auf, dass bei Neon das Produkt im Energiebereich zwischen 80 eV und 135 eV monoton mit der Photonenenergie steigt. Das Längen-Druck-Produkte bezogen auf das Absorptionslängen-Druck-Produkt sind für die Gaszelle in (b), für die Überschalldüse in (c) und das Nickelröhrchen (d) für die experimentellen Parameter dargestellt. Werte in der Größenordnung von 10 werden dabei für die Überschalldüse und das Nickelröhrchen erreicht. Die Gaszelle erreicht Werte größer als 100.

In den bisherigen theoretischen Überlegungen zur Phasenanpassung und Absorption wurde angenommen, dass die Gasdichte bzw. der Gasdruck nicht von der Länge des Gasmediums abhängen. Der Vergleich der Druckabhängigkeit für verschiedene Geometrien zeigt, dass dies offensichtlich nicht der Fall ist. Je größer die Rayleigh-Länge gewählt wird, desto wichtiger wird die Dichtehomogenität des Gasmediums bzw. besteht die Möglichkeit Dichtehomogenitäten geschickt auszunutzen. Anstatt der Verwendung einer Überschalldüse oder eines Nickelröhrchens kann auch eine kompliziertere Gasdichte mit mehreren Gasdüsen erzeugt werden [139] und wird für die in Abschnitt 4.1.7 diskutierte Quasiphasenanpassung benutzt.

4.1.6 Hohe Harmonische an SF_6

Typischerweise verwendet man für die Erzeugung von Hohen Harmonischen Edelgase als nichtlineares Medium. Aber auch molekulare Gase sind für den HHG-Prozess interessant und in vielen Experimenten untersucht [54, 140-142]. Numerische Simulationen sind für die komplizierten Mehrelektronensysteme von Molekülen schwierig, allerdings gibt es einige Simulationen für das H_2^+ -Molekül [143-145]. Für HHG mit Edelgasen spielen zwei Parameter eine entscheidende Rolle – das Ionisationspotential I_p und die Polarisierbarkeit. Argon ist deshalb so hoch verbreitet für HHG im Bereich um 30 nm Wellenlänge, da $I_p = 15.8$ eV noch recht hoch ist und die Polarisierbarkeit ist durch die 18 Elektronen ebenfalls hoch. Für Neon

und Helium ist I_p höher und somit können höhere Photonenenergien erzeugt werden, allerdings ist die Polarisierbarkeit geringer und damit die Effizienz der Frequenzkonversion. Xenon und Krypton bieten eine höhere Polarisierbarkeit, aber die Ionisationspotentiale sind niedriger und sie sind somit nur für die effiziente Erzeugung von niedrigen Ordnungen geeignet.

Die Vielzahl von Molekülen im Vergleich zu den Edelgasen bietet die Möglichkeit geeigneterer Paare von Polarisierbarkeit und Ionisationspotential zu finden. Für die physikalische Beschreibung der Erzeugung von Hohen Harmonischen im 3-Stufen-Modell (Abschnitt 4.1.1) gibt es dann aber einige Schwierigkeiten. So liegen die Moleküle nicht in einem Grundzustand vor, sondern sind durch Molekülschwingungen und -Rotationen bei Raumtemperatur teilweise angeregt. Auch die Rekombinationsbedingung im Molekül kann z.B. durch Dissoziation des Moleküls verändert sein. Somit enthält ein molekulares Gas dann neben den Ausgangsmolekülen auch teilweise dissoziierte Moleküle und einzelne Atome. Wenn z.B. ein Elektron aus einem SF_6 -Molekül herausgelöst wird, ist das SF_6^+ -Molekül nicht stabil, sondern dissoziiert in $\text{SF}_5^+ + \text{F}$ [146].

Neben dem Auffinden eines geeigneten Paares aus Polarisierbarkeit und Ionisationspotential [54] bietet die Untersuchung von Molekülschwingungen im SF_6 -Molekül bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen neue Einblicke in die molekulare Schwingungsdynamik [52] bzw. einen experimentell einfach zugänglichen Test für Modelle jenseits des einfachen 3-Stufen-Modells [147, 148].

Zur experimentellen Untersuchung der Erzeugung von Hohen Harmonischen in SF_6 wurde als Geometrie ein Nickelröhrchen mit 2 mm Durchmesser verwendet und eine Vergleichsmessung mit Argon gemacht. Zur Erzeugung wurden Laserpulse mit 27 fs Pulsdauer mit einer Linse ($f=400$ mm, $f\# = 15$) auf $2 \cdot 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ fokussiert und die Position des Nickelröhrchens relativ zum Fokus für bestmögliche Phasenanpassung optimiert. Die Ergebnisse der Messung sind in Abb. 41 dargestellt.

Dabei fällt auf, dass für die Phasenanpassung in SF_6 ein deutlich niedrigerer Druck als für Argon benötigt wird und das Plateau deutlich breiter ist. Insgesamt ist aber das HHG-Signal im Vergleich zu Argon etwa um den Faktor 10 reduziert. Da der geometrische Anteil zur Phasenanpassung bei beiden Messungen unverändert ist und beide Gase vergleichbare optische Eigenschaften besitzen, ist der entscheidende Unterschied die Plasmadispersion. Das erste Ionisationspotential für Argon beträgt 15.8 eV (Ar^+) und ist weit vom zweiten Ionisationspotential 27.6 eV (Ar^{2+}) entfernt. Somit kann man davon ausgehen, dass nur Elektronen des einfach ionisierten Argons zur Plasmadichte beitragen. Für SF_6 sind die ersten Ionisierungsenergien dicht beieinander (15.3 eV, 16.9 eV und 18.0 eV) und man kann eine höhere Ionisationswahrscheinlichkeit und somit höhere Plasmadichte erwarten. Um Phasenanpassung zu erreichen muss dann bei gleicher Plasmadichte wie für Argon der Gasdruck bei SF_6 niedriger sein. Durch die unterschiedlichen Ionisationspotentiale ist es auch zu erklären, dass sich der Plateaubereich ausweitet, da eine Überlagerung von HHG-Spektren mit Unterschiedlichen Ionisationspotentialen stattfindet [54]. Außerdem beobachtet man für die 17. Harmonische in Abb. 41(b) eine Aufspaltung für geringe Drücke. Obwohl das Gesamtsignal für SF_6 im Vergleich zu Argon deutlich geringer ist, bietet die Vergrößerung des Plateaubereichs einige mögliche Anwendungen, die auf breitbandige XUV-Beleuchtung zur Spektroskopie abzielen. Ebenso ist es möglich das breitbandige HHG-Signal von SF_6 für eine

Kaskade von HHG-Prozessen zu nutzen, z.B. bei den im nächsten Abschnitt untersuchten Prozessen. Hierbei sollte es sich als experimentell positiv erweisen, dass SF_6 bei geringeren Gasdrücken betrieben werden kann als Argon.

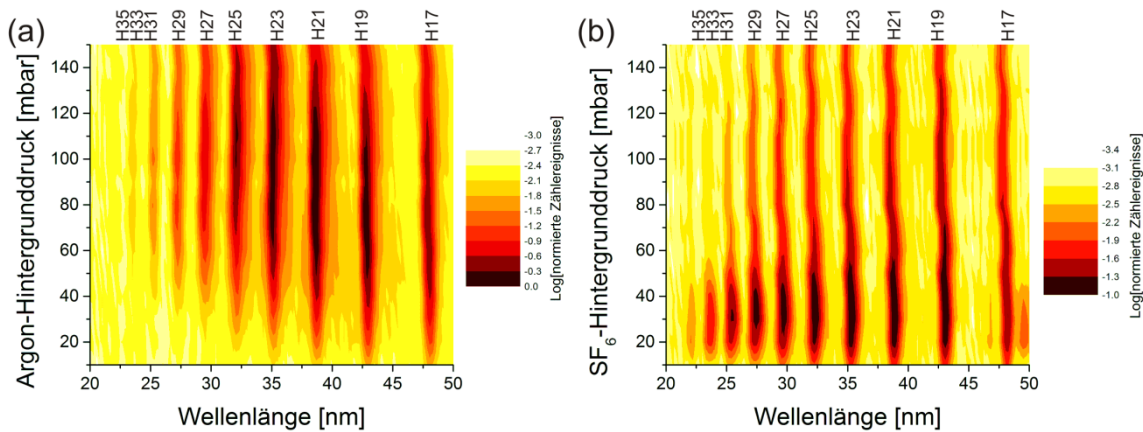


Abb. 41: Vergleich der Erzeugung von Hohen Harmonischen von Argon und SF_6 in einem Nickelröhrchen. (a) zeigt die Druckabhängigkeit des HHG-Signals in logarithmischer Farbskala für Argon. Man erkennt, dass die beste Phasenanpassung für die 19. bis 23. Harmonische im Bereich um 100 mbar erreicht wird. Für SF_6 ist das HHG-Signal etwa um den Faktor 10 reduziert (b). Die beste Phasenanpassung wird für 30 mbar erreicht und umfasst ein Plateau von der 19. bis zur 31. Harmonischen.

4.1.7 Steigerung der XUV-Signals durch modulierte Gasdichten

Für die in den vorherigen Abschnitten präsentierten theoretischen Überlegungen wurde angenommen, dass die Teilchenzahldichte für die Erzeugung Hoher Harmonischer eine konstante Funktion ist. Bei nochmaliger Betrachtung von Abb. 34 stellt man fest, dass der konstruktive Anstieg des XUV-Signals nur über eine kleine Länge erstreckt und sich dann ein Absorptionsgleichgewicht ausbildet. Modifiziert man nun den experimentellen Aufbau so, dass bei Phasenanpassungsbedingung entweder die Gasdichte oder Laserpuls zusätzlich moduliert wird, spricht man von Quasiphasenanpassung. Dabei versucht man das XUV-Signal zu steigern, indem man periodisch nach jeder Kohärenzlänge den Phasenversatz zwischen Laserpuls und den Harmonischen korrigiert. Die bekanntesten Ansätze dazu sind die Verwendung einer Hohlkernfaser mit moduliertem Durchmesser [149, 150], die Verwendung von gegenläufigen Laserpuls in einer Hohlkernfaser [151, 152] und die Anordnung mehrerer Gasjets (Abb. 42(a) und [153-155]). Letztere Möglichkeit ist insbesondere interessant um lange Rayleigh-Längen schwacher Fokussierung besser auszunutzen, als dies mit einem einzigen nichtlinearen Medium der Fall wäre (vgl. Abschnitt 4.1.5.) bzw. die Laserpulsenergie sich nicht praktikabel in Hohlkernfasern koppeln lässt. Neben der periodischen Anordnung gleichartiger Gasjets ist es auch möglich unterschiedliche Gasdrücke bzw. Gassorten zu verwenden. Die hier vorgestellten Experimente beziehen sich jeweils auf zwei Gasjets, so dass man nicht von einer periodischen sprechen kann. Aktuelle Untersuchungen lassen zumindest Zweifel an Vorteilen einer periodisch modulierten Gasdichte aufkommen [156].

Eine Möglichkeit ist dabei in einem Gasjet niedrige Ordnungen von Harmonischen (VUV) zu erzeugen und sie zur Ionisation im zweiten Gasjet zu benutzen. Da die Photonenenergie der Harmonischen höher ist als das Ionisationspotential, kann das Volumen der Harmonischenerzeugung im zweiten Gasjet vergrößert werden, da der infrarote Laserpuls nur die Bewegung der Elektronen steuert [157, 158]. Eine Schwierigkeit stellt hierbei die

Einstellung eines optimierten Phasenversatzes zwischen VUV- und IR-Puls dar (Abb. 42(b) und [159]). Verwendet man stattdessen direkt eine Gasmischung aus Xenon und Helium kann man eine deutliche Steigerung des XUV-Signals beobachten [160].

Die zweite Möglichkeit nutzt genau umgekehrte Druckverhältnisse wie die VUV-unterstützte HHG und wird als parametrische Röntgenverstärkung (*X-ray parametric amplification*, XPA) [161, 162] bezeichnet. Hierbei wird schon im ersten Gasjet das XUV-Signal erzeugt und dieses im zweiten Gasjet verstärkt (Abb. 42(c)). Der hierbei auftretende Verstärkungsprozess ist experimentell schwierig von Quasiphasenanpassung abzugrenzen und im Folgenden sollen die Argumente für oder gegen Verstärkung näher erläutert werden. Schon nach der Veröffentlichung der ersten Resultate und Modelle stellte ich die Frage, ob ein zusätzlicher Verstärkungsprozess nötig ist, um die Messergebnisse zu beschreiben [163, 164].

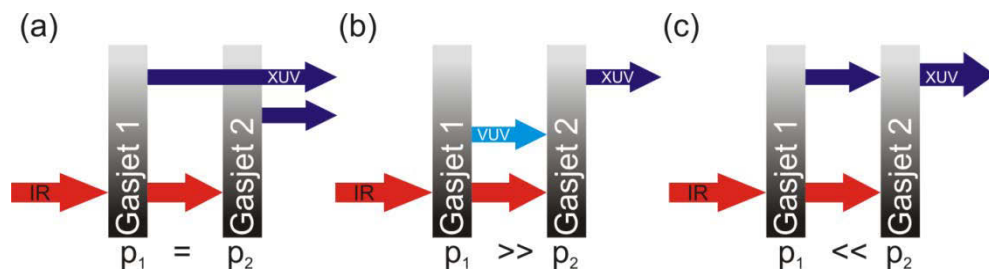


Abb. 42: Verschiedene Methoden zur Steigerung des XUV-Signals Hoher Harmonischer durch Verwendung mehrerer Gasjets. Quasiphasenanpassung ist in (a) dargestellt. Dabei werden mehrere Gasjets mit gleichem Gas bei ähnlichem Druck verwendet und der Laserpuls erzeugt Hohe Harmonische mit gleichem Spektrum in jedem Gasjet. Durch Variation des Abstands können diese konstruktiv überlagert werden. Verwendet man VUV-unterstützte HHG (b), so werden im ersten Gasjet niedrige Harmonische erzeugt, welche die Ionisation im zweiten Gasjet erhöhen und das Laserfeld wird nur für den Propagations- und Rekombinationsschritt des 3-Stufen-Modells benutzt. Für parametrische Röntgenverstärkung (c) ist der Druck im ersten Gasjet gering um Hohe Harmonische zu erzeugen und dabei den Laserpuls möglichst wenig zu beeinflussen. Im zweiten Gasjet müssen Druck und Ionisationsrate so hoch wie möglich sein, um große Verstärkung zu erreichen.

Um die parametrische Verstärkung zu untersuchen wurden ähnliche Laserparameter wie in Abb. 38 verwendet. Als HHG-Quellen wurden zwei gasgefüllte Nickelröhrchen (im Folgenden wieder als Gasjets bezeichnet) verwendet. Der erste Gasjet wurde dabei als XUV-Seed mit Neon und der zweite Gasjet als XUV-Verstärker mit Helium betrieben. Als XUV-Diagnostik wurde das Spektrum um 100 eV gemessen und das Strahlprofil nach spektraler Filterung mit Zirkon- und Titan-Filtern untersucht. Zur Optimierung der Parameter konnten beide Gasjets motorisiert relativ zum Laserfokus und gegeneinander verschoben werden und der Hintergrunddruck im Fall von Neon zwischen 0 bar und 1.2 bar und im Fall von Helium zwischen 0 bar und 5 bar variiert werden. Beide Gasjets befinden sich vor dem Laserfokus, damit im Helium-Gasjet eine möglichst hohe Laserintensität vorliegt, eine entsprechende Ionisation gewährleistet ist und lange Trajektorien beim Verstärkungsprozess genutzt werden. Man beobachtet dann, wie aus dem breitbandigen XUV-Signal des Neon-Gasjets ein Linienspektrum aus einzelnen Harmonischen wird und sich das Strahlprofil durch die Verstärkung verschmälert [20]. Ein wesentlicher Unterschied zur VUV-unterstützten HHG ist das Ionisationsverhalten im zweiten Gasjet. Im Fall von XPA kann dabei die Ionisation durch die XUV-Strahlung des ersten Gasjets vernachlässigt werden. Um den zugrunde liegenden Prozess genauer zu untersuchen, wurde das Verhalten des zweiten Gasjets im Modell der SFA untersucht und die entsprechenden Gleichungen (Abschnitt 4.1.1) um den Beitrag des ersten

Gasjets modifiziert [21]. Dabei können die Übergangsmatrixelemente des Dipoloperators in 4 Anteile zerlegt werden:

1. HHG im zweiten Gasjet ohne Anwesenheit eines XUV-Anteils aus dem ersten Gasjet,
2. das Herauslösen eines Elektrons durch XUV- und IR-Anteil, Propagation und Rekombination im IR-Laserfeld (vgl. VUV-unterstützte HHG),
3. Ionisation durch das IR-Laserfeld, Beschleunigung im IR-Laserfeld und Rekombination unter Anwesenheit des XUV-Feldes aus dem ersten Gasjet (XPA) und
4. einen vernachlässigbaren Anteil der Vierwellenmischung zwischen XUV- und IR-Feld.

Insbesondere für den zweiten und dritten Anteil zum Übergangsmatrixelemente ergibt sich eine Abhängigkeit im verstärkten XUV-Signal von der Verzögerungszeit zwischen IR-Laserpuls und XUV-Puls aus dem ersten Gasjet, welche man experimentell beobachten kann [21].

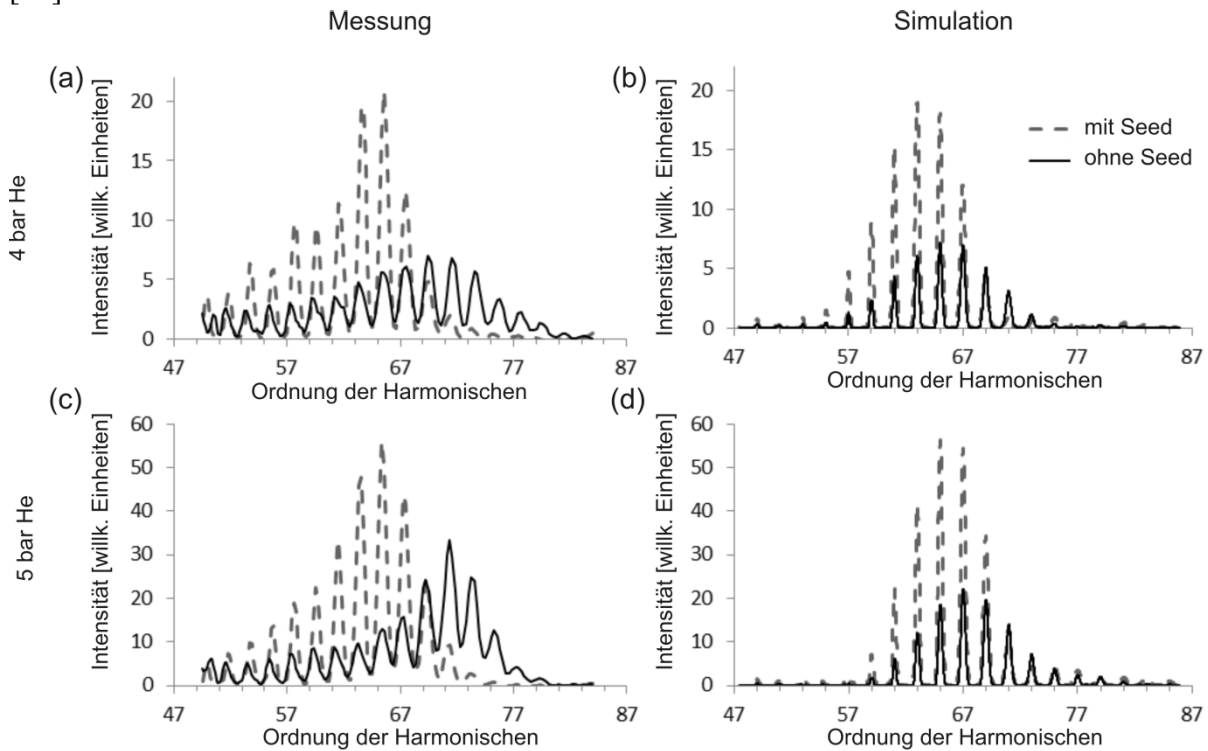


Abb. 43: Gemessene (a, c) und simulierte (b, d) XUV-Spektren des zweiten Gasjets. In Messung und Simulation erkennt man, dass sich das XUV-Signal ändert, wenn man das XUV-Signal des ersten Gasjets als Seed verwendet. Die Spektren sind auch den Seed-normiert und zeigen so die Signalstärke des zweiten Gasjets im Vergleich bzw. auftretende Verstärkung.

Ausgehend von Gleichung (78) kann man dann die Anteile der vier Prozesse mit $k = p_{st} + A_{IR} + A_{XUV}$ getrennt auswerten [21] und Simulationsdaten mit den experimentellen Befunden vergleichen (Abb. 43). Zunächst erkennt man für einen Druck von 4 bar bzw. 5 bar gute Übereinstimmung der gemessenen Daten (Abb. 43(a) und (c)) und der Simulationsdaten (Abb. 43(b) und (d), Details der Simulationsparameter in [21]). Man erkennt, dass sich das XUV-Spektrum für einen vorhandenen XUV-Seed aus dem ersten Gasjet (Abb. 43, grau gestrichelte Linie) deutlich rotverschiebt gegenüber dem Signal ohne Seed (Abb. 43, schwarz durchgezogene Linie). Dies unterstützt das Vorhandensein eines Verstärkungsprozesses, welcher sensitiv auf den zeitlichen Abstand zwischen XUV- und IR-Puls ist (*intrapulse x-ray*

parametric amplification (IXPA), [21, 165-167]), und ist deutlich von Quasiphasenanpassung abzugrenzen.

Allerdings beträgt der Abstand beider Gasjets nur einige Millimeter [20], so dass es zunächst fraglich ist, ob beide Gasjets unabhängig voneinander betrachtet werden können. Insbesondere ob eine starke Erhöhung des Gasdrucks im zweiten Gasjet nicht zu einer Erhöhung der Gasdichte im ersten Gasjet führt bzw. einer Gasdichteverteilung zwischen beiden Gasjets. Hierbei könnten ähnliche Effekte auftreten wie bei der Untersuchung der Gaszelle (Abschnitt 4.1.5). Zusätzliche Effekte könnten durch die Gasmischung hervorgerufen werden, so dass experimentelle Bedingungen wie im Fall von VUV-unterstützter HHG vorliegen [160], die eine zusätzliche Ausdehnung des beitragenden Volumens zur Erzeugung von Hohen Harmonischen bewirkt. Experimente mit getrennter Fokussierung für beide Gasjets und einem Abstand von etwa 0.5 m lieferten bisher keine neuen Einsichten, da die räumlichen und zeitlichen Schwankungen des verwendeten Lasersystems eine verlässliche Messung verhinderten. Der experimentelle Aufbau der kollinearen Fokussierung mit einstellbarem Zeitversatz zwischen beiden Laserpulsen ist in [168] beschrieben.

Auch in Hinsicht auf das verwendete theoretische Modell gibt es einige kontrovers diskutierte Punkte [165, 169, 170], die sich insbesondere mit der Rolle von Verstärkung und Verlust beim untersuchten Prozess beschäftigen. In der in [171] vorgestellten Modellierung sind Verstärkung und Verlust des XUV-Pulses getrennt untersucht und zeigt neue Bereiche für parametrische Röntgenverstärkung durch den Einsatz molekularer Medien auf.

Insgesamt bietet die Untersuchung der Steigerung des XUV-Signals durch eine Kaskade von nichtlinearen Wechselwirkungen ein interessantes Forschungsfeld, insbesondere im Hinblick darauf mit Laborquellen nichtlineare XUV-Optik zu betreiben. Parametrische Röntgenverstärkung eröffnet dabei nicht nur die Möglichkeit das quadratische Signalwachstum mit der Teilchenzahl bei der Erzeugung von Hohen Harmonischen (bei Vernachlässigung von Absorption) durch exponentielles Signalwachstum zu ersetzen, sondern auch geringe Signalintensitäten für die zerstörungsfreie Untersuchung von Molekülen durch nachträgliche Verstärkung zu steigern und so die Belichtungszeiten der Messwertaufnahme zu verkürzen. Der aktuelle Prozess des Vergleichs von ersten Messungen mit theoretischen Modellen und deren Weiterentwicklung für parametrische Röntgenverstärkung ist dabei der notwendige Schritt zur Verstetigung des Messverfahrens.

4.2 Spektral geformte XUV-Pulse

Durch die Erzeugung von Hohen Harmonischen steht breitbandige XUV-Strahlung im Labormaßstab zu Verfügung, deren räumliche und zeitliche Eigenschaften durch den erzeugenden Laserpuls und das nichtlineare Medium aufgeprägt werden. Möchte man die spektralen Eigenschaften des XUV-Pulses modifizieren, muss dies auf indirektem Weg über die Manipulation des Laserpulses erfolgen, da im XUV-Bereich verbreitete Pulsformungstechniken, z.B. Flüssigkristallmanipulatoren [172], verformbare Spiegel [173] oder akusto-optische Modulatoren [174] nicht anwendbar sind. Die Manipulation des Laserpulses kann entweder räumlich oder spektral erfolgen. Die räumliche Optimierung des Strahlprofils mit einem Modulator (*spatial light modulator*, SLM) zielt darauf ab, die Phasenanpassungsbedingung im gaußschen Fokus bzw. durch Anregung verschiedener Fasermode in der Hohlkernfaser zu verbessern und eine Steigerung des XUV-Signals zu

erreichen [132, 175]. Eine gasgefüllte Hohlkernfaser ist durch die lange Wechselwirkungsgeometrie für spektrale Pulsformung des Laserpulses empfindlich, welche es erlaubt einzelne Harmonische heraus zu züchten oder zu unterdrücken, Bereiche im XUV-Spektrum hervor zu heben oder über die Laserpulsdauer das Gesamtsignal zu maximieren [72, 176]. Dieses Phänomen muss der Phasenanpassungsbedingung in der Hohlkernfaser zugeschrieben werden, da man eine derartige spektrale Formbarkeit im gaußschen Fokus nicht beobachtet, obwohl auch die HHG-Spektren in der mikroskopischen Beschreibung durch unterschiedliche Laserpulsformen beeinflussbar sind [72, 177].

4.2.1 Spektrale Pulsformung in einer Hohlkernfaser

Der experimentelle Aufbau zur spektralen Pulsformung ist in Abb. 15 dargestellt. Dabei werden die verstärkten Laserpulse (800 nm Wellenlänge, 0.9 mJ Pulsenergie, 80 fs Pulsdauer, nähere Details in [178]) in einer gasgefüllten Hohlkernfaser (78 cm Faserlänge, 250 μm Innendurchmesser) spektral verbreitert und anschließend mit einem Prismenpaar komprimiert. In der Symmetrieebene des Kompressors befindet sich ein Goldspiegel mit verformbarer Oberfläche (19 Aktuatoren, 0 V bis 300 V Eingangssignal, 7 μm Auslenkstrecke, $30 \times 8 \text{ mm}^2$ Oberfläche), mit dem einzelnen Wellenlängenkomponenten des verbreiterten Laserspektrums zusätzliche Phasen aufgeprägt werden können. Der Vorteil gegenüber pixelbasierten Modulatoren ist das Fehlen von Diskretisierungsartefakten bei der Pulsformung. Mit den spektral verbreiterten, komprimierten Laserpulsen können dann Hohe Harmonische in einer mit Argon gefüllten Hohlkernfaser erzeugt werden. Das XUV-Signal wird nach spektraler Filterung mit einem Spektrometer gemessen. Dieses dient gleichzeitig als Rückkopplungssignal für den Optimierungsalgorithmus der Pulsform. Es handelt sich dabei um einen evolutionären Algorithmus – einer iterativen Optimierungsstrategie basierend auf Charles Darwins *survival of the fittest*. Ein Zustand des Parameterraums wird durch ein Individuum (XUV-Spektrum) repräsentiert, wobei die einzelnen Parameter als dessen Gene (19 Spannungswerte des Goldspiegels) kodiert sind. Eine Anzahl von Individuen wird als Generation zusammengefasst, von denen die bestangepassten Individuen einen Evolutionsschritt überleben. Durch Prozesse wie Klonen, Kreuzen und Mutation wird die nächste Generation gebildet. Die Bewertung der Fitness erfolgt durch Vergleich einer gemessenen Fitness mit einem vorgegebenen Ziel. Im XUV-Spektrum können verschiedene Bereiche als Optimierungsziel ausgewählt werden, z.B. das Gesamtsignal oder einzelne Bereiche, und mathematische Operationen auf diese angewendet werden und so die Fitnesswerte entsprechend zugeordnet werden. Einige Beispiele sind in Abb. 44 dargestellt.

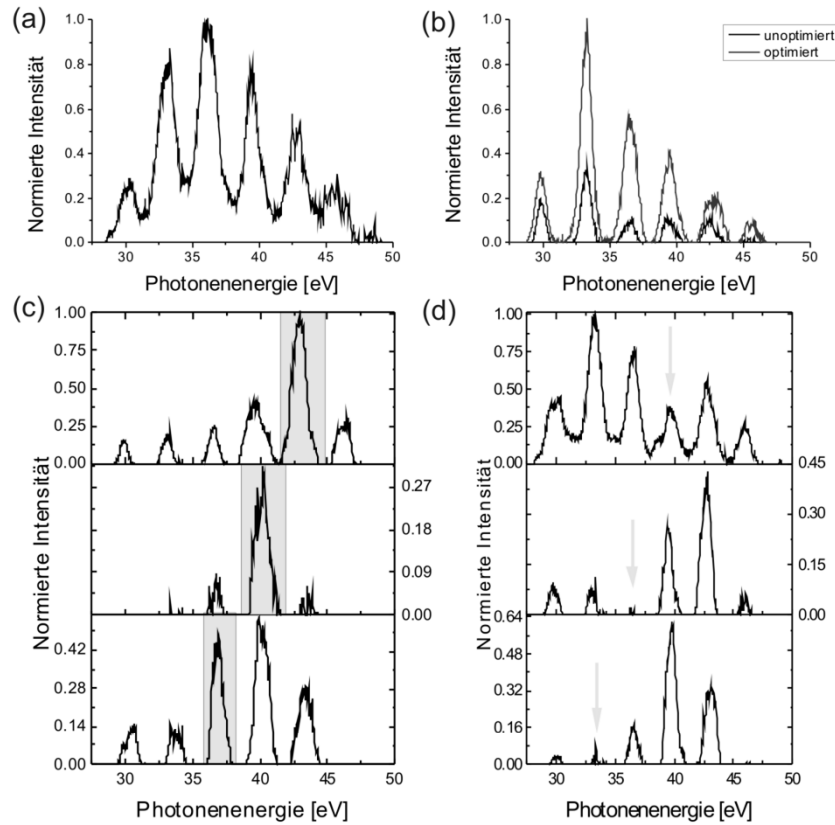


Abb. 44: Verschiedene Optimierungsziele für Pulsformung in HHG-Experimenten. (a) zeigt ein typisches Spektrum, dass durch Optimierung der Pulsdauer mit flacher Spiegeloberfläche erzeugt wurde. Durch Optimierung der Spiegeloberfläche (b) ist es möglich, das XUV-Signal deutlich zu steigern. Weiterhin kann die Pulsform so beeinflusst werden, dass bestimmte Regionen im XUV-Spektrum gesteigert (c, grauer Bereich) oder unterdrückt (d, graue Pfeile) werden.

4.2.2 Modulation der Laserpulse

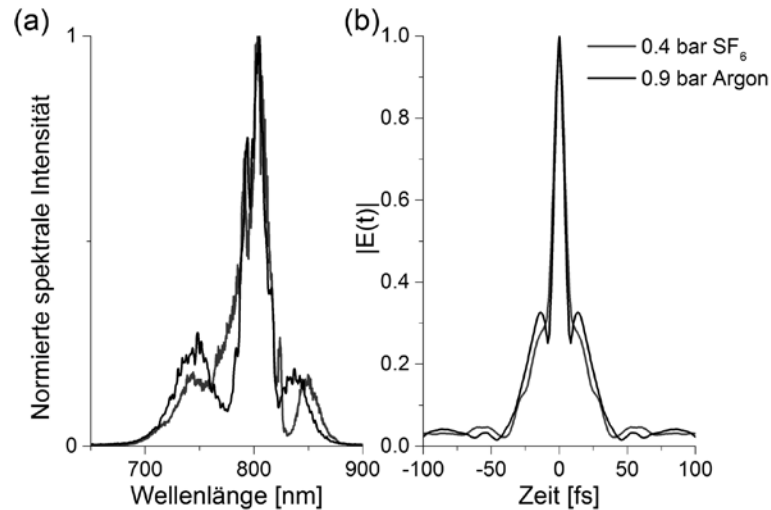


Abb. 45: Spektral verbreiterte Laserpulse durch Propagation durch eine mit Argon (schwarz) oder SF_6 (grau) gefüllte Hohlkernfaser. Aus dem Spektrum (a) kann unter Annahme einer flachen spektralen Phase durch Fourier-Transformation der zeitliche Verlauf des Betrags der elektrischen Feldstärke bestimmt werden (b).

Vergleicht man die Spektren der mit Argon bzw. SF_6 gefüllten Hohlkernfaser in Abb. 45, so stellt man fest, dass sich die nur geringfügig unterscheiden. Auch die zeitliche Pulsform unter Annahme einer flachen spektralen Phase unterscheidet sich kaum. Trotz dieser geringen Unterschiede beider Spektren sollten aber deutliche Effekte bei der Erzeugung Hoher

Harmonischer in einer Hohlkernfaser hervortreten. Einerseits wurde bereits gezeigt, dass selbst kleine Änderungen der spektralen Phase des Laserpulses große Auswirkungen auf das Spektrum der Harmonischen haben [179-181]. Andererseits gibt es durch die Verwendung von SF₆ auch einige experimentelle Vorteile. So wird die spektrale Bandbreite für SF₆ durch den erhöhten rotverschobenen Teil des Spektrums einige Nanometer größer. Außerdem sind die spektralen Einbrüche bei 775 nm und 825 nm in Vergleich zu Argon weniger stark ausgeprägt, was eine Verbreiterung des zentralen Maximums bewirkt. Für das in Abb. 15 dargestellte Pulsformungsexperiment ergeben sich als Konsequenzen eine bessere Ausleuchtung der Goldspiegeloberfläche und eine höhere Modulierbarkeit der spektralen Phase im Bereich zwischen 760 nm und 825 nm.

4.2.3 Optimierungsexperimente

Um den Einfluss des gewählten Gases auf die Pulsformung zu untersuchen, wurde der Druck der Gase so gewählt, dass die verbreiterten Spektren eine ähnliche Breite aufweisen (Abb. 45) und die Erzeugung von Hohen Harmonischen wurde für zwei verschiedene Szenarien untersucht. Diese waren zunächst die Steigerung des Gesamtsignals der Hohen Harmonischen und dann die Auswahl einer einzelnen Harmonischen. Für beide Experimente wurde der Druck in der mit Argon gefüllten Hohlkernfaser konstant gehalten, um auch tatsächlich nur den Einfluss der Pulsformung zu untersuchen. Als Ergebnisse beider Experimente werden jeweils das optimierte Spektrum und die Entwicklung des Fitnessparameters gezeigt. Für den evolutionären Algorithmus wurde mit 50 Individuen pro Generation, einer Mutationsrate von 0.5, einer Kreuzungsrate von 0.4 und einer Klonrate von 0.1 gewählt. Die Aufnahmezeit der CCD pro Individuum betrug 1500 ms.

4.2.3.1 Steigerung des Gesamtsignals

Die Optimierung zur Steigerung des Gesamtsignals wurde für vier verschiedene Drücke in der mit Argon gefüllten Hohlkernfaser zur Erzeugung Hoher Harmonischer durchgeführt und die Ergebnisse sind in Abb. 46 dargestellt. Für die Optimierung wurde das integrierte Signal zwischen 23 nm und 43 nm als Fitnessparameter verwendet.

Für 10 mbar sieht das optimierte Signal ähnlich aus, unabhängig davon, ob der Laserpuls mit Argon oder SF₆ spektral verbreitert wurde. Die 27. und 31. Harmonischen sind für SF₆ leicht geringer ausgeprägt. Betrachtet man den Verlauf der Fitness, so fällt auf, dass für SF₆ der Startwert deutlich höher ist und der Anstieg der Fitness geringer ist. Diese Beobachtungen sind ein erster Hinweis darauf, dass die zeitliche Phase im SF₆-verbreiterten Puls geringfügig anders ist. Für 20 mbar Hintergrunddruck beobachtet man eine Erhöhung der 27. Harmonischen im Falle der spektralen Verbreiterung in SF₆. Da der Gasdruck und die Hohlkernfaser zur Erzeugung Hoher Harmonischer unverändert sind, kann diese Erhöhung nur auf Plasmadispersion und somit eine Änderung der zeitlichen Pulsform zurückgeführt werden. Auch andere niedrigere Ordnungen der Harmonischen zeigen ein erhöhtes Signal, was die Fitness im Vergleich zur spektralen Verbreiterung in Argon erhöht. Ähnlich sieht das Ergebnis für 30 mbar aus. Im Fall von Argon sieht man, dass Phasen Anpassung niedrigere Ordnungen der Harmonischen unterdrückt, was für SF₆ kompensiert werden kann. Für 40 mbar ist das integrierte XUV-Signal nach der Optimierung etwa gleich stark, allerdings sind die Spektren sehr unterschiedlich. Für die spektrale Verbreiterung in SF₆ sind die niedrigeren Ordnungen der Harmonischen stärker ausgeprägt.

Es zeigt sich also, dass für höhere Gasdrücke die XUV-Spektren der in SF_6 verbreiterten Laserpulse einen höheren Anteil niedriger Harmonischer enthalten und sich so die spektrale Bandbreite erhöht. In einem bestimmten Parameterbereich kann das XUV-Signal im Vergleich zur Benutzung von Argon zur spektralen Verbreiterung verdoppelt werden.

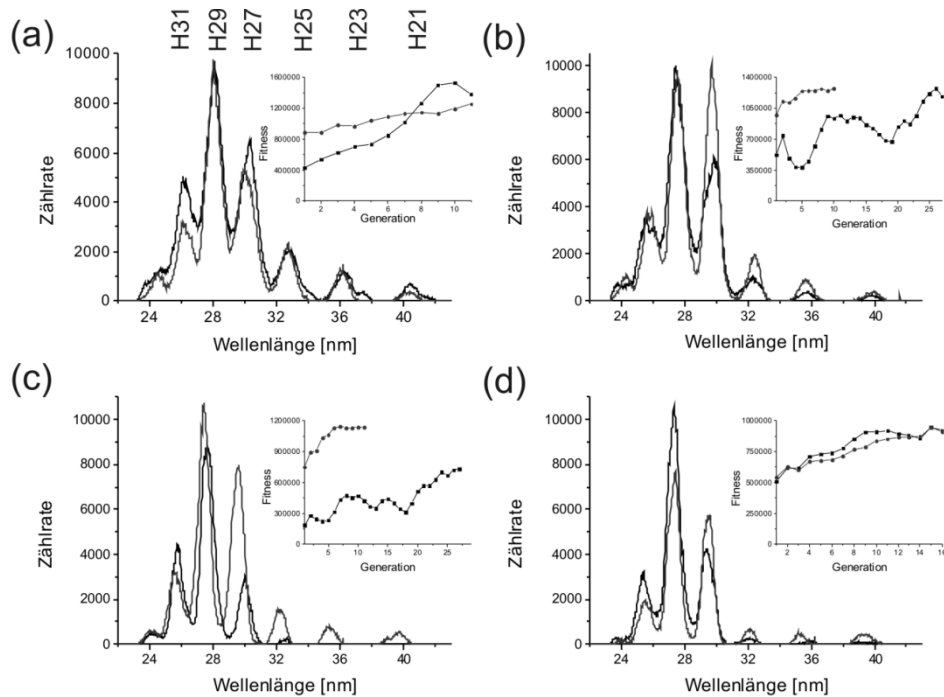


Abb. 46: Optimierte XUV-Spektren einer mit Argon gefüllten Hohlkernfaser für zeitlich geformte Laserpulse nach spektraler Verbreiterung in Argon (schwarze Linie) und SF_6 (graue Linie). Die Optimierungen wurden so durchgeführt, um das XUV-Signal zwischen 23 nm und 43 nm zu maximieren und Fitness des bestangepassten Individuums jeder Generation ist in die Spektren eingefügt. Die Optimierungen wurden bei 10 mbar (a), 20 mbar (b), 30 mbar (c) und 40 mbar (d) Argonhintergrunddruck in der Hohlkernfaser zur Erzeugung von Hohen Harmonischen durchgeführt.

4.2.3.2 Selektive Optimierungen

Die Optimierungsexperimente für die Auswahl einer einzelnen Harmonischen sind in Abb. 47 dargestellt. Für die Optimierungen wurden spektrale Regionen im XUV-Spektrum ausgewählt und in Bezug auf das Gesamtsignal maximiert. In diesem Fall entspricht die Fitnessfunktion dem relativen Anteil am Gesamtspektrum. Bei den hier gezeigten Optimierungen könnte also auch ein sehr niedriges Signal eine hohe Fitness erreichen. Daher ist diese Optimierungsstrategie nicht geeignet, um einen hohen XUV-Fluss zu erreichen. Allerdings soll hier der Einfluss des nichtlinearen Mediums für die spektrale Verbreiterung auf die Pulsformung untersucht werden und für die Untersuchung der Charakteristika des XUV-Spektrums ist die gewählte Optimierungsstrategie geeignet.

Für die Nutzung von Argon für die spektrale Verbreiterung sind die Resultate für die Optimierung einer einzelnen Harmonischen für drei verschiedene Regionen im XUV-Spektrum in Abb. 47(a) gezeigt. Der dazugehörige Verlauf der Fitness ist in Abb. 47(b) zu sehen. Dabei treten drei Auffälligkeiten hervor. Für die Optimierung der 29. Harmonischen (blau markierter Bereich) erhöht sich die Fitness nur geringfügig und niedrige Harmonische tragen weiterhin zum XUV-Spektrum bei. Für die 27. Harmonische (rot markierter Bereich) kann der spektrale Anteil auf 65% erhöht werden. Allerdings ist dieser hohe spektrale Anteil

mit einem absoluten Rückgang des Gesamtsignals verbunden. Für die Optimierung der 25. Harmonischen (schwarz / grau markierter Bereich) zeigt sich ein starker Anstieg der Fitnessfunktion. Das absolute Signal der 25. Harmonischen ist dabei etwa so stark wie bei der Optimierung der 29. Harmonischen, allerdings sind niedrigere und höhere Harmonische besser unterdrückt.

Wenn SF₆ für die spektrale Verbreiterung genutzt wird, sind nur noch zwei prinzipielle Verläufe für die Optimierungen beobachtbar (Abb. 47(c) und (d)). Für hohe Photonenenergien (blau, rot und schwarz / grau markierter Bereich) kann eine einzelne Harmonische auf über 50% des Gesamtsignals erhöht werden. Für niedrige Photonenenergien (grün und violett markierter Bereich) enthält das Spektrum auch nach der Optimierung noch alle Harmonischen und der spektrale Anteil einer einzelnen Harmonischen bleibt unter 30% des Gesamtsignals. Dieses unterschiedliche Verhalten im Vergleich zur spektralen Verbreiterung mit Argon kann auch wieder durch das leicht modifizierte Phasenprofil durch den SRS-Anteil in SF₆ zugeordnet werden.

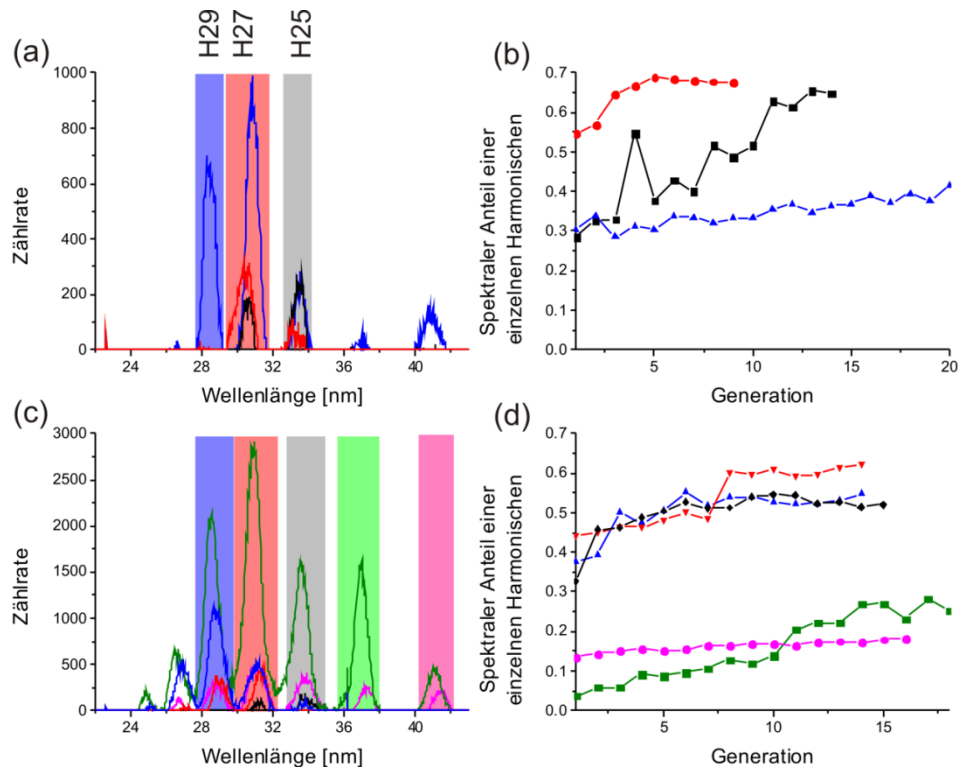


Abb. 47: Optimierung für einzelne Harmonische für in Argon verbreiterte (a) und in SF₆ verbreiterte (c) geformte Laserpulse. Die eingefärbten Bereiche zeigen den ausgewählten spektralen Bereich für die Optimierungen und die entsprechenden optimierten Spektren als eingefärbte Linien. Der zugehörige Verlauf der Fitness-Funktion wird in (b) und (d) in der gleichen Farbe wie die optimierten Spektren gezeigt.

Insgesamt konnte gezeigt werden, dass die Erzeugung von Hohen Harmonischen in einer Hohlkernfaser ein empfindliches Messverfahren zur Beurteilung der Qualität eines Verbreiterungsmechanismus ist. SF₆ weist bei der spektralen Verbreiterung zusätzlich stimulierte Raman-Streuung auf und erhält dadurch eine zusätzliche spektrale Phase im Vergleich zu Argon, welche bei Optimierungsexperimenten bewirkt, dass das Gesamtsignal der Harmonischen in einem gewissen Parameterbereich verdoppelt werden kann. Außerdem wird auch der Parameterbereich für die selektive Optimierung einzelner Harmonischer gesteigert.

4.3 Entwicklung eines XUV-Detektors

Seitdem Hohe Harmonische aus infraroten Laserpulsen durch nichtlineare Wechselwirkung mit Gasen erzeugt werden, besteht eine Aufgabe darin, den erzeugenden Laserpuls herauszufiltern und eine reine Wechselwirkung einer zu untersuchenden Probe mit der XUV-Strahlung sicherzustellen. Insbesondere wenn ein Teil des infraroten Laserpulses benutzt wird dynamische Prozesse zu starten und der verzögerte XUV-Puls zur Beobachtung des zeitlichen Verlaufs genutzt wird, kommt der Filterung eine wichtige Bedeutung zu (Abb. 48). Verbleibende Infrarotkomponenten im XUV-Arm können die komplette experimentelle Auswertung gefährden, unabhängig davon ob XUV-Transmission [182, 183] oder Photoelektronen [184] gemessen oder Attosekunden-Streaking [14] durchgeführt werden soll. Eine wichtige Bedeutung kommt der Filterung auch bei XUV-Fokusdiagnostik mit einem Ce:YAG-Fluoreszenz-Schirm zu, welche dann mit einer CMOS-Kamera beobachtet wird, welche empfindlich für das Laserlicht ist [185].

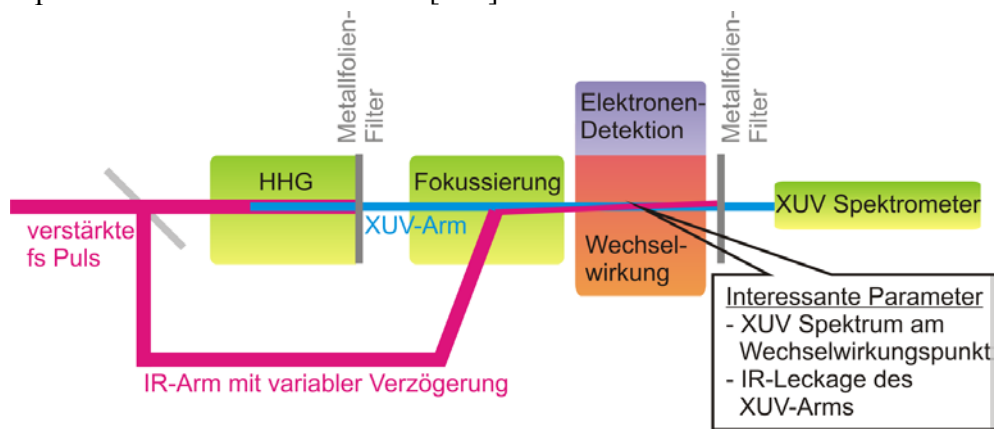


Abb. 48: Prinzipskizze eines Pump-Probe-Experiments mit XUV- und IR-Pulsen. Ein Teil des Laserpulses wird in ein Edelgas zur Erzeugung von Hohen Harmonischen fokussiert. Die Filterung der entstehenden XUV-Strahlung vom fundamentalen Laserstrahl erfolgt mit Metallfolien. Anschließend kann die XUV-Strahlung fokussiert werden um z.B. mit atomaren oder molekularen Medien in Wechselwirkung zu treten. Elektronen und Ionen aus dieser Wechselwirkung können gemessen werden. Falls ein infraroter Laserstrahl für zeitaufgelöste Experimente genutzt wird, muss eine weitere Metallfolie verwendet werden um die CCD des XUV-Spektrometers zu schützen. Durch die Benutzung von Metallfiltern vor und hinter der Wechselwirkungszone entsteht eine Ungewissheit über Infrarotlichtleckage durch Fehlstellen der ersten Metallfolie.

Weiterhin kann es durch Intensitätsschwankungen des Lasers zu Wellenlängenverschiebung der Harmonischen kommen bzw. Amplitudenänderungen durch geänderte Phasenanpassungsbedingungen. Bei Experimenten mit längerer Belichtungszeit würde dies zu einer Verschlechterung der Auflösung im Falle hochauflösender XUV-Mikroskopie bzw. zu zusätzlichen Energieverschiebungen bei der Photoelektronenspektroskopie führen.

4.3.1 XUV-Reflektion von metallischen Oberflächen

Im XUV-Spektralbereich ist die Reflektivität von Spiegeln sehr gering für senkrechten Einfall, daher wird in Experimenten meist streifender Einfall benutzt.¹⁷ Hier wird die Reflektivität von Metallspiegeln für 45° Einfallswinkel untersucht. Diese ermöglichen es auf

¹⁷ Der Brechungsindex ist $n(\omega) = 1 - \delta + i\beta$ und unter Vernachlässigung von Absorption ergibt sich der kritische Winkel für externe Totalreflektion $\theta_c = \sqrt{2\delta}$, welcher von der Oberfläche gemessen wird.

Kosten einer reduzierten Reflektivität, einen einfachen optischen Weg den Detektor zu bauen. Zur Berechnung der Reflektivität für die Metallspiegel können Tabellenwerte verwendet werden [118]. Für die hier vorgestellten Experimente wurden unbeschichteter, polierter Edelstahl (Fe.72Cr.18Ni.10) und Cäsiumiodid (CsI)-beschichteter Edelstahl verwendet. Für die Berechnung der Reflektivität kann Edelstahl mit Eisen und die 300 nm dicke CsI-Schicht als ausgedehnte Festkörper approximiert werden.

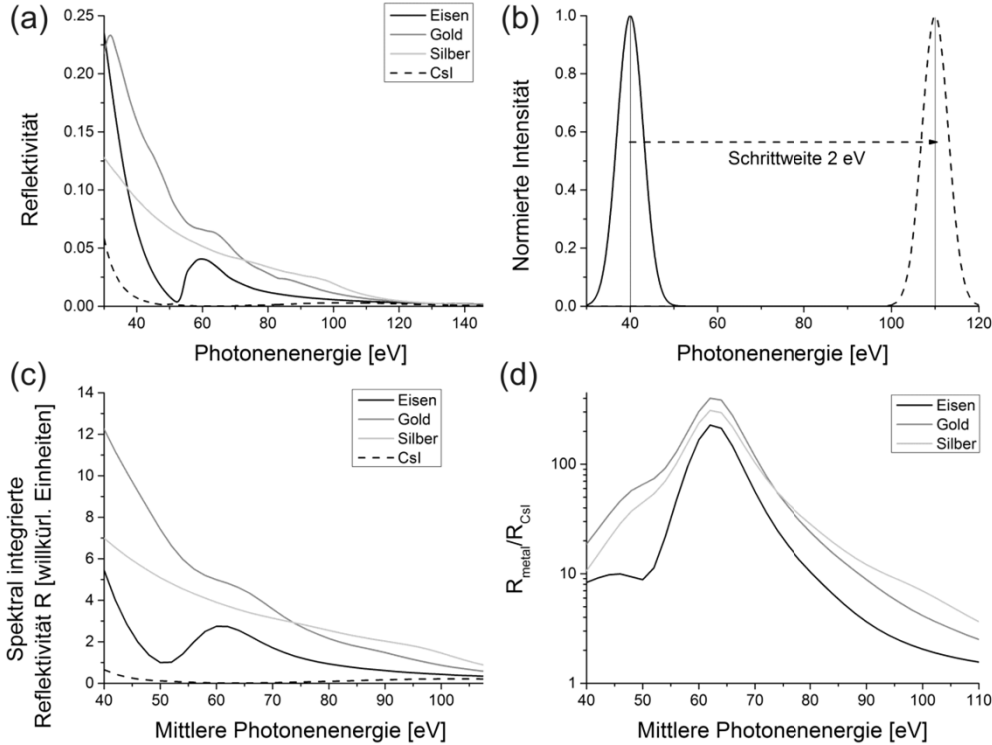


Abb. 49: (a) Berechnete Reflektivität für Eisen, Gold, Silber und Cäsiumiodid für 45° Einfallswinkel und s-Polarisation aus [118]. Um eine breitbandige XUV-Quelle zu berücksichtigen werden die Reflektivitätswerte mit einer gaußschen Spektralverteilung (Standardabweichung 3 eV) im Bereich von 40 eV bis 110 eV mit einer Schrittweite von 2 eV gefaltet (b) und die spektral integrierte Reflektivität ist in (c) gezeigt. (d) zeigt das Verhältnis der Reflektivitäten in Bezug auf CsI in logarithmischer Darstellung.

Um die Reflektivität für breitbandige XUV-Strahlung Hoher Harmonischer zu untersuchen, müssen die tabellierten Werte (Abb. 49(a)) mit der spektralen Pulsform gefaltet werden. Hier werden gaußsche Verteilungen mit einer Standardabweichung von 3 eV verwendet, welche die mittlere Photonenergie von 40 eV bis 110 eV im Abstand von 2 eV durchlaufen (Abb. 49(b)). Das Ergebnis der Faltung ist in Abb. 49(c) dargestellt. Um konstante Vorfaktoren der Faltung zu eliminieren, kann das Reflektivitätsverhältnis in Bezug auf CsI berechnet werden (Abb. 49(d)). Dies wäre auch das Signalverhältnis, das ein spektral integrierender Detektor im entsprechenden Spektralbereich messen würde. Für mittlere Photonenergien von 40 eV bis 50 eV erkennt man, dass das Reflektivitätsverhältnis zwischen Edelstahl und CsI etwa 10 beträgt, was auch dem Unterschied im Verhältnis eines Messsignals entsprechen würde. Für andere Substrate wächst das Verhältnis schnell in Richtung 50, was experimentelle Schwierigkeiten aufgrund sehr unterschiedlicher bzw. sehr geringer Signalstärken hervorruft. Aus dem gleichen Grund ist ersichtlich, dass CsI-Beschichtungen im Bereich zwischen 55 eV und 80 eV nicht anwendbar sind. Hier böte das Reflektivitätsverhältnis von zwei unbeschichteten Metallen eine Alternative. Für mittlere Photonenergien von 80 eV bis 110 eV wird der Vergleich mit einer CsI-Beschichtung wieder experimentell anwendbar. Für die

Bestimmung des Reflektivitätsverhältnisses für lasergenerierte Hohe Harmonische ist zusätzlich zu beachten, dass die Oberflächen auch IR-Licht reflektieren. Werden dünne Metallfolien zur Reduzierung des IR-Anteils verwendet, so beträgt ihre IR-Transmission etwa 10^{-5} bis 10^{-8} und ist damit weiterhin vergleichbar mit der Konversionseffizienz von 10^{-5} bis 10^{-6} bei der Erzeugung Hoher Harmonischer.

4.3.2 Messungen mit geformten XUV-Pulsen

Der experimentelle Aufbau zur Charakterisierung der Reflektivität der Oberflächen ist in Abb. 50 dargestellt. Dabei werden die spektral geformten XUV-Pulse wie in Abschnitt 4.2.1 beschrieben erzeugt und dann entweder mit dem XUV-Spektrometer detektiert oder die reflektierte Strahlung mit einem Channeltron gemessen werden. Um die so gemessene Reflektivität mit tabellierten Werten zu vergleichen, werden die gemessenen XUV-Spektren folgendermaßen ausgewertet:

- 1) Die gemessenen Spektren werden von der Wellenlängenskala in Photonenenergie umgerechnet.
- 2) Von diesen Spektren wird das Hintergrundrauschen der CCD abgezogen und die Spektren normiert.
- 3) Diese Spektren werden durch 1000 Datenpunkte interpoliert und mit den tabellierten Reflektivitätswerten von Eisen bzw. CsI multipliziert.
- 4) Beides wird dann spektral integriert, um das integrierte reflektierte XUV-Signal R zu bestimmen. Daraus wird dann das Verhältnis R_{Fe}/R_{CsI} bestimmt.
- 5) Dieses Verhältnis kann auch über die Reflektionsmessung der Oberflächen mit dem Channeltron bestimmt werden. Dabei wird das zeitaufgelöste Signal der Sekundärelektronen des Channeltrons in einem Zeitintervall integriert und das Verhältnis ist wieder R_{Fe}/R_{CsI} .

Die Bestimmung der Reflektivität der unbeschichteten und CsI-beschichteten Edelstahloberfläche ist in Abb. 51 dargestellt. Dabei zeigt der Vergleich zwischen berechnetem Reflektivitätsverhältnis und experimentell mit dem Channeltron bestimmten Signalverhältnis gute Übereinstimmung. Die Abweichung zwischen Berechnung und Messung beträgt etwa 3%. Dies bestätigt, dass das Verhältnis der Reflektivitäten beider Oberflächen eine geeignete Messmethode für die Charakterisierung der einfallenden, spektral geformten XUV-Strahlung ist. Außerdem ist die gute Übereinstimmung ein klarer Hinweis darauf, dass die spektrale Transmissionsfunktion des Spektrometers sehr flach sein muss. Somit ist die Reflektivitätsmessung beider Oberflächen auch geeignet die korrekte spektrale Response eines XUV-Spektrometers zu prüfen.

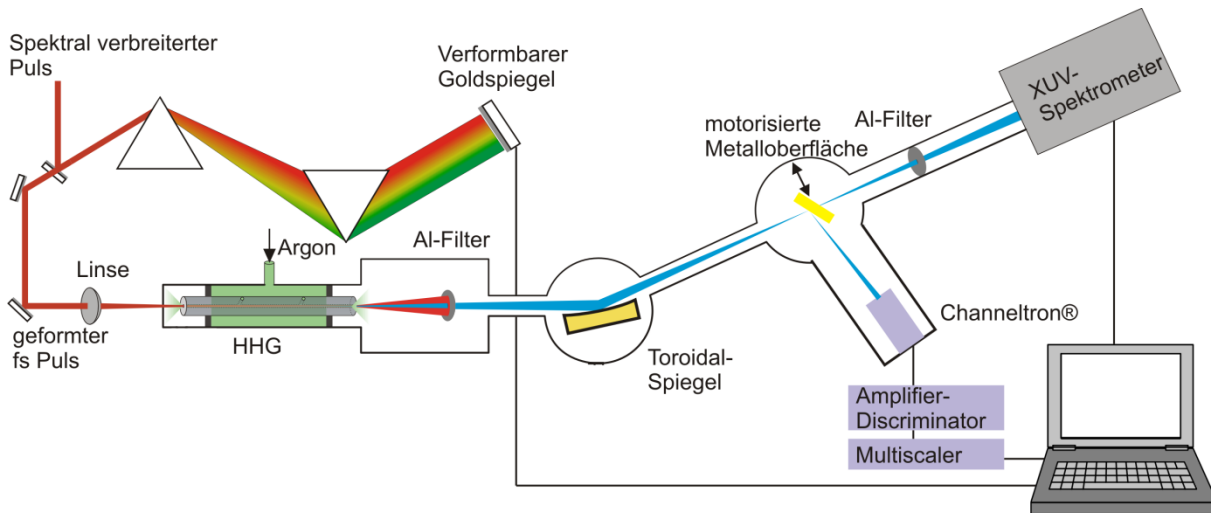


Abb. 50: Ein Prismenkompressor mit computergesteuertem verformbarem Goldspiegel wird zur Pulsformung von spektral verbreiterten Laserpulsen benutzt. Die Pulse werden in eine Argon-gefüllte Kapillare fokussiert um Hohe Harmonische zu erzeugen. Die XUV-Pulse werden durch einen Aluminium-Filter vom infraroten Laserpuls getrennt und werden dann entweder in ein XUV-Spektrometer oder auf eine Metalloberfläche gelenkt, welche den XUV-Strahl auf ein Channeltron reflektiert. Das Signal der im Channeltron erzeugten Sekundärelektronen wird zeitaufgelöst gemessen.

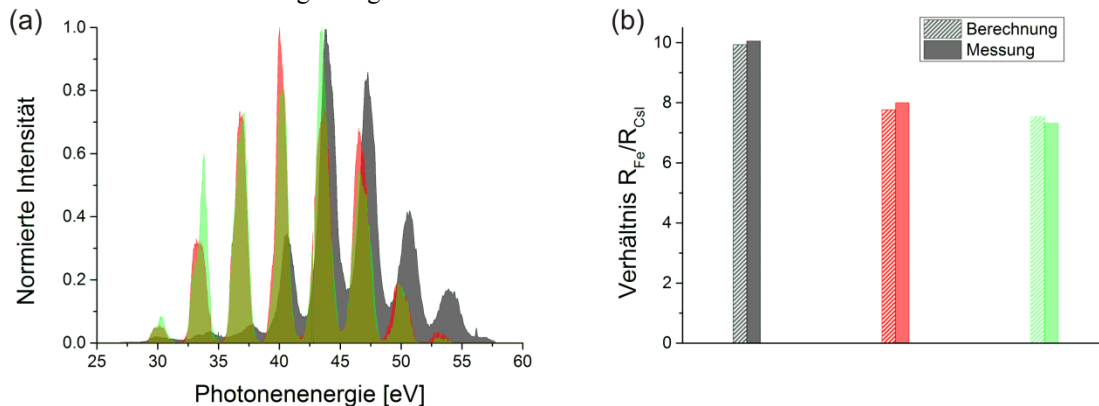


Abb. 51: XUV-Spektren für 3 verschiedene Pulsformen sind in (a) gezeigt. Ein Vergleich zwischen Berechnung und Messung ist in (b) für das zugehörig gefärbte Spektrum dargestellt. Unter Benutzung der Form des XUV-Spektrums und tabellierten Reflektivitätswerten kann das Verhältnis der Reflektivität von Edelstahl und CsI berechnet werden (schraffierte Säulen) und zeigt gute Übereinstimmung mit der Messung (gefüllte Säulen).

In den bisherigen Messungen wurde das XUV-Signal durch eine spektral integrierte Reflektivitätsmessung charakterisiert, wobei das IR-Licht, welches durch Metallfolienfilter unterdrückt wird, nicht berücksichtigt wurde. Allerdings wird durch zusätzliche Fehlstellen¹⁸ in den Metallfolien immer ein gewisser Anteil IR-Licht transmittiert, welcher im Spektralbereich des XUV-Spektrometers nicht beobachtet werden kann. Obwohl das Channeltron ebenfalls nicht direkt empfindlich für IR-Licht ist, kann damit der verbliebene IR-Anteil der XUV-Strahlung bestimmt werden. Dazu wurde die Position der Metallfolie horizontal und vertikal variiert, um einen erhöhten Anteil IR-Licht zu transmittieren. Hierbei

¹⁸ Diese Fehlstellen können z.B. Löcher im Mikrometerbereich vom Herstellungsprozess der Metallfolien sein. Diese bewirken, dass das IR-Licht des Lasers in verschiedene Ordnungen gebeugt wird, während das XUV-Licht ungebeugt transmittiert wird. Metallfolien sind typischerweise durch Lagerung an Luft mit einer Metalloxidschicht von einigen Nanometern überzogen. Durch den Beschuss mit IR- und XUV-Licht kann es zu chemischen Reaktionen kommen, die ebenfalls das Verhältnis zwischen XUV-Transmission und IR-Unterdrückung beeinflussen.

wurde die Reflektion der Edelstahloberfläche mit einem IR-Restlichtverstärker beobachtet und als qualitatives Maß für das transmittierte IR-Licht benutzt. Dann wurde die gleiche Messung durchgeführt und die Ergebnisse sind in Abb. 52 dargestellt. Man beobachtet nun eine starke Abweichung zwischen Berechnung und Messung, die zwischen 10% und 40% niedrigere Ergebnisse liefert. Um die Ursache für den Unterschied genauer zu untersuchen, sind für die Messungen in Abb. 51(grünes Signal) und Abb. 52(graues Signal) die zeitaufgelösten Signale des Channeltrons für hohen und niedrigen IR-Untergrund in Abb. 53 dargestellt.

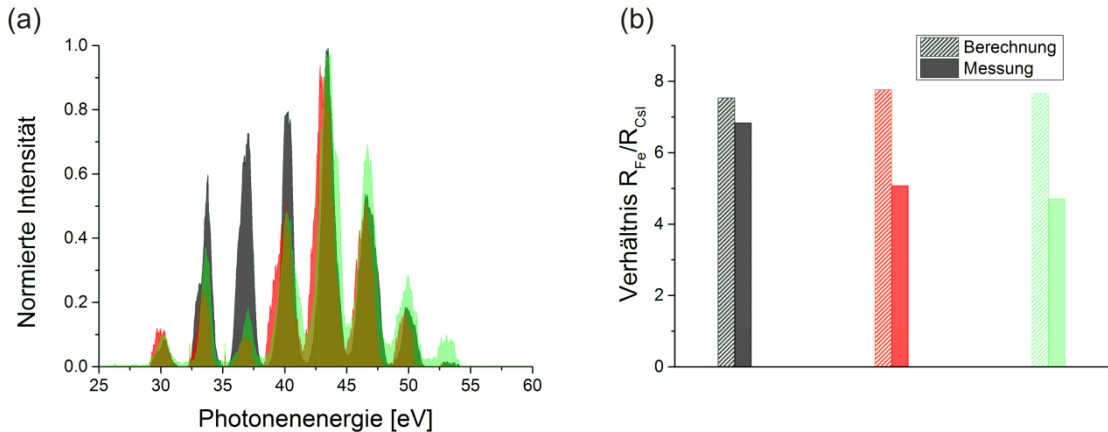


Abb. 52: XUV-Spektren für 3 verschiedene Pulsformen mit erhöhtem IR-Anteil sind in (a) gezeigt und der zugehörige Vergleich von Berechnung und Messung ist in (b) dargestellt. Hierbei wurden die Form des XUV-Spektrums und tabellierte Reflektivitätswerte benutzt, um das Verhältnis der Reflektivitäten von Edelstahl und CsI zu berechnen (schraffierte Säulen) und es zeigt sich eine deutliche Abweichung von den Messungen (gefüllte Säulen). Ursache dafür ist der nicht berücksichtigte IR-Anteil.

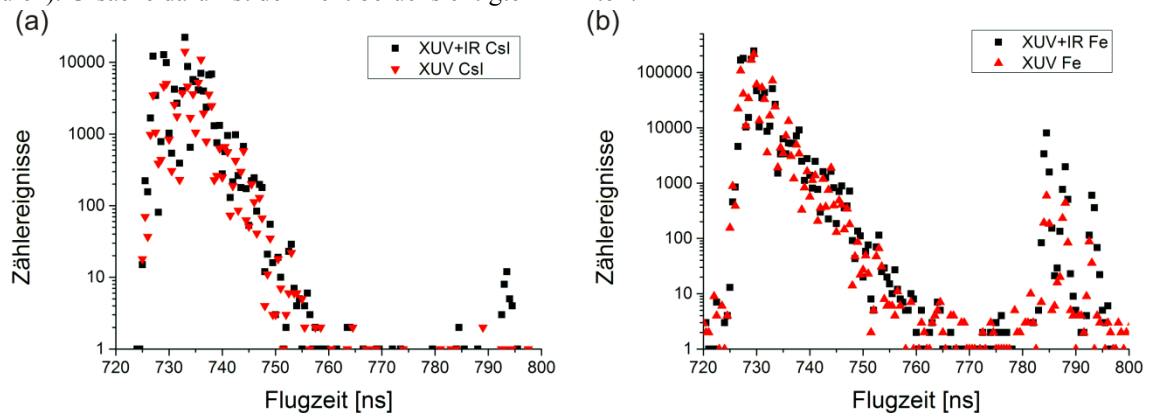


Abb. 53: Zeitaufgelöste Darstellung der Sekundärelektronensignale des Channeltrons für XUV-Pulse mit erhöhtem (schwarze Vierecke) und unterdrücktem IR-Licht (rote Dreiecke). (a) zeigt Messungen für CsI und (b) zeigt Messungen für Edelstahl. Durch die niedrige IR-Reflektivität von CsI ist nur ein kleiner zusätzlicher Peak zwischen 780 ns und 800 ns sichtbar. Durch das zusätzliche IR-Licht erhöhen sich die Zählereignisse in diesem Zeitfenster von 9 auf 36, was etwa 10^{-4} der Gesamtzählereignisse entspricht. Für die Edelstahloberfläche ist die IR-Reflektivität höher. Daher sind die Zählereignisse zwischen 780 ns und 800 ns stärker ausgeprägt und erhöhen sich von 1778 auf 17981, was über 1% der Gesamtzählereignisse entspricht.

Das XUV-Signal erstreckt sich von 720 ns bis 750 ns, wobei der Laserpuls 720 ns zum Trigger des Lasers verschoben ist. Im zeitaufgelösten Sekundärelektronensignal ist dies auch der dominierende Anteil, unabhängig davon, ob der IR-Anteil erhöht ist oder nicht. Allerdings können für erhöhten IR-Anteil zusätzliche Peaks im zeitaufgelösten Signal beobachtet werden, welche 60 ns verzögert sind und zwischen 780 ns und 800 ns auftauchen. Ihr

Ursprung ist nicht eindeutig bestimmbar, da der Durchmesser des IR-Lichts am Ort des Channeltrons bereits einige mm beträgt und somit viele Bereiche des Messgeräts beleuchtet. Man kann auch nicht ausschließen, dass durch den IR-Puls Verunreinigungen in der Nähe des Channeltrons ionisiert werden und geladene Teilchen dann mit einer Verzögerung detektiert werden. Messungen ohne XUV-Strahlung zeigten diese Peaks auch. Sättigungseffekte der Auswertelektronik können somit ausgeschlossen werden und das fast vollständige Fehlen von Peaks bei 720 ns bestätigt, dass das Channeltron direkt unempfindlich für IR-Strahlung ist. Ungeachtet der genauen Ursache für die Peaks zwischen 780 ns und 800 ns, sind sie für unbeschichteten Edelstahl (Abb. 53(b)) höher als für die CsI-Beschichtung (Abb. 53(a)). Dies liegt an der höheren Reflektivität für Edelstahl und konnte unter verschiedenen experimentellen Konfigurationen stets gezeigt werden. Prinzipiell sollte es möglich sein, das IR-Licht quantitativ zu bestimmen, indem man das Signalverhältnis zwischen XUV-Signal und zusätzlichem Peak vergleicht. Für die unbeschichtete Edelstahloberfläche (Abb. 53(b)) steigt durch erhöhte IR-Strahlung der zusätzliche Peak auf etwa 1% des Gesamtsignals an. Dies erlaubt eine qualitative Aussage, also insbesondere ob starker IR-Untergrund vorhanden ist oder nicht. Eine Schwierigkeit liegt darin, genau zu bestimmen, wie viel IR-Signal direkt mit dem XUV-Peak überlagert ist.¹⁹ Die Änderung der Zählrate durch IR-Photonen bewirkt eine Abweichung des Reflektivitätsverhältnisses in Abb. 52(b). Ob die Abweichung positiv oder negativ ist, hängt von der Geometrie des Detektors, dem elektronischen Ausleseprozess, dem Abstand zur reflektierenden Oberfläche und der Divergenz von XUV- und IR-Strahl ab. Für die hier vorgestellten Messungen des Channeltron-Signals wird das Signalverhältnis der XUV-Reflektivität vermindert, weil der Beitrag zwischen 780 ns und 800 ns nicht berücksichtigt wird und im Falle von Edelstahl und seiner höheren Reflektivität die Zählereignisse des XUV-Peaks durch IR-Photonen erhöht werden.

4.3.3 Anwendungen und Ausblick

Die Experimente zur Untersuchung der Reflektivität von beschichteten und unbeschichteten Metalloberflächen und ihrer Messung mit Teilchendetektoren haben gezeigt, dass mit einem einfachen, kompakten Aufbau eine Überwachung des Signals von Hohen Harmonischen möglich ist. Da die Messmethode unabhängig von der Kollimation oder Fokussierung der verwendeten XUV-Quelle ist, kann dieses Messverfahren eingesetzt werden, ohne das eigentliche Experiment zu stören. Das Messverfahren kann bezüglich des Reflektionswinkels so angepasst werden, dass eine einfache Implementierung in Experimentierkammern mit Hohen Harmonischen oder anderen XUV-Quellen bietet. Insbesondere für Untersuchungen mit Hohen Harmonischen bieten das Messverfahren und der einfache Auswertalgorithmus eine Detektionsmöglichkeit für die unerwünschte IR-Transmission durch Metallfolienfilter. Die einfache Motorisierung der Oberflächen in einer Achse erlaubt es einfache, optionale XUV-Diagnostiken in einem experimentellen Aufbau zu konstruieren und somit ähnliche Arbeitsweisen wie mit Klappspiegeln im sichtbaren Spektralbereich. Im Gegensatz zu XUV-Spektrometern, welche die XUV-Strahlung mit einem Spalt beschneiden und somit Unsicherheit über den gesamten XUV-Photonenfluss durch räumliche Strahlverlagerung

¹⁹ In Abb. 53 ist das Signal mit IR-Anteil im gesamten Zeitbereich höher. Eine klare Unterscheidung zwischen IR- und XUV-Signal ist nur Bereich zwischen 780 ns und 820 ns möglich.

beinhalten, kann durch die Reflektionsmessung einer Oberfläche das gesamte XUV-Signal überwacht werden.

5. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde die Skalierbarkeit nichtlinearer Optik in atomaren und molekularen Gasen untersucht, wobei die Wechselwirkungsgeometrie im Vordergrund stand.

Im Bereich der perturbativen nichtlinearen Optik wurden dazu die Geometrien hoher Wechselwirkungslänge, wie gasgefüllte Hohlkernfasern und Bessel-Strahlen, näher betrachtet. Dabei hat sich gezeigt, dass transiente stimulierte Raman-Streuung in einer SF_6 -gefüllten Hohlkernfaser ein zusätzlicher nichtlinearer Effekt ist, welcher trotz fehlender Phasenanpassung in der kollinearen Geometrie zusätzliche Vorteile für die Anwendbarkeit gasgefüllter Hohlkernfasern bietet. Einerseits können im Vergleich zu Argon als nichtlinearem Medium die erforderlichen Eingangsintensitäten mindestens halbiert werden und erlauben so eine Skalierung des Konzepts für Yb-dotierte Ultrakurzpulsscheiben- und Faserlaser im medizinischen und industriellen Bereich. Andererseits lässt sich die zusätzliche Modulation durch das molekulare Medium in Pulsformungsexperimenten mit Hohen Harmonischen nutzen, um das XUV-Signal zu erhöhen. Die Kompression der spektral verbreiterten Laserpulse wurde für SF_6 für 800 nm und 400 nm Wellenlänge im Bereich der transienten Raman-Streuung durchgeführt und erlaubt mit Prismen eine Verkürzung der Pulsdauer auf ein Drittel der Pulsdauer der Eingangslaserpulse.

Die Untersuchung von antiresonanten Hohlkernfasern hat gezeigt, dass spektrale Verbreiterung über mehrere optische Oktaven erreicht werden kann. Diese Fasern ermöglichen es, die erforderliche Eingangsintensität der verwendeten Laserpulse weiter abzusenken und somit den Parameterbereich von Ultrakurzpulslasern in medizinischen und industriellen Anwendungen zu erreichen. Zusätzlich erlauben sie es durch Anpassung der resonanten Strukturen den Mechanismus der spektralen Verbreiterung zu steuern und so durch Abstimmung von Faseraufbau und nichtlinearem Gasmedium ein maßgeschneidertes System zur spektralen Verbreiterung von ultrakurzen Laserpulsen zu erzeugen.

Als eine medizinische Anwendung, die von spektraler Verbreiterung in Hohlkernfasern profitieren kann, wurde die Bestimmung von Fluorophorverteilungen dünner Schichten vorgestellt, welche für ophthalmologische Untersuchungen benutzt werden können. Die zentralen Vorteile der Verwendung von gasgefüllten Hohlkernfasern sind einerseits die Erhöhung der räumlichen Stabilität der Laserpulse und somit eine Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses und eine Pulsdauerverkürzung für die Untersuchung von Schichtsystemen im Bereich von 10 Mikrometern.

Um die Frequenzverschiebung der stimulierten Raman-Streuung zu nutzen und Weißlichterzeugung zu vermeiden, wurde die konische Geometrie eines Bessel-Strahls für die nichtlineare Wechselwirkung studiert. Dabei hat sich gezeigt, dass der rotverschobene Stokes-Strahl hervorragende räumliche und zeitliche Eigenschaften hat und sehr gut als Laserquelle für weitere Experimente geeignet ist, welche Pulsenergien von mehreren Millijoule benötigen. Im Bereich der extremen nichtlinearen Optik wurde die Erzeugung von Hohen Harmonischen in verschiedenen Wechselwirkungsanordnungen untersucht.

Auch hierbei bieten gasgefüllte Hohlkernfasern die höchste Wechselwirkungslänge und erlauben durch Phasenanpassung Sensitivität auf die spektrale Pulsform des Laserpulses zur spektralen Formung des XUV-Spektrums. Umgekehrt kann die hohe Nichtlinearität der Erzeugung von Hohen Harmonischen benutzt werden, um die spektrale Phase eines

Laserpulses hinsichtlich seiner Eignung zur Harmonischenerzeugung zu bestimmen. Dieses Verfahren wurde benutzt, um die unterschiedlich verbreiterten Spektren aus einer mit Argon bzw. SF_6 gefüllten Hohlkernfaser zu charakterisieren. Dabei zeigt sich, dass die Verbreiterung mit SF_6 vorteilhaft zur Steigerung des gesamten XUV-Signals und für die selektive Anregung einzelner Harmonischer ist.

Als Möglichkeit die hohe Pulsenergie von Terawattlasern für die Erzeugung von Harmonischen zu nutzen wurden Experimente mit schwacher Fokussierung durchgeführt und dabei verschiedene Möglichkeiten untersucht, mit der nichtlinearen Wechselwirkung die Rayleigh-Länge von einigen Millimetern zu nutzen. Hierbei konnte gezeigt werden, dass man durch die Auswahl der Gasgeometrie im gaußschen Fokus das XUV-Signal hinsichtlich Photonenfluss, spektraler Bandbreite und Durchstimbarkeit optimieren kann. Durch eine Kaskade von nichtlinearen Wechselwirkungen ist es möglich, das Signal Hoher Harmonischer deutlich zu steigern. Neben Quasiphasenanpassung gibt es dabei prinzipiell die Möglichkeit parametrische Verstärkung als zusätzlichen Mechanismus zu nutzen. Ein Vergleich von experimentellen und simulierten Spektren ermöglicht es, den Parameterbereich für zukünftige Experimente abzustecken.

Die Untersuchung der Erzeugung von Hohen Harmonischen von Molekülen bietet in diesem Zusammenhang interessante und vielfältige Möglichkeiten die zusätzlichen molekularen Freiheitsgrade auszunutzen, z.B. Moleküldissoziationen und Molekülschwingungen. Im Vergleich zur Erzeugung von Hohen Harmonischen mit Argon konnte für SF_6 beobachtet werden, wie sich das Plateau der Harmonischen verbreitert und die maximale XUV-Emission bei niedrigeren Drücken stattfindet.

Für zeitaufgelöste Experimente mit XUV- und IR-Pulsen müssen die Harmonischen spektral vom erzeugenden Laserpuls getrennt werden, wofür typische XUV-Spektrometer keine ausreichende Empfindlichkeit bieten. Um die spektrale Reinheit des XUV-Pulses innerhalb der Wechselwirkungszone zu charakterisieren, wurde eine Detektionsverfahren mit Teilchendetektoren entwickelt, welches die XUV-Reflektivität verschiedener Oberflächen misst. Qualitativ kann so die spektrale Güte des Signals von Hohen Harmonischen beurteilt werden.

Insgesamt wurden in dieser Arbeit zahlreiche Konzepte und Experimente vorgestellt, die entweder in den Bereich der Quellen- oder Detektorentwicklung zählen. Insbesondere das Skalierungsverhalten nichtlinearer Optik in Gasen kann dabei auf vielfältige Weise durch die Wechselwirkungsgeometrie beeinflusst und so auf eine bestimmte Anwendung angepasst werden.

6. Literaturverzeichnis

- [1] P.J. MOHR, D.B. NEWELL, B.N. TAYLOR: The 2014 CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants (Web Version 7.2). URL <http://physics.nist.gov/constants>.
- [2] A. MCPHERSON, G. GIBSON, H. JARA, U. JOHANN, T.S. LUK, I.A. MCINTYRE, K. BOYER, C.K. RHODES: Studies of Multiphoton Production of Vacuum Ultraviolet-Radiation in the Rare-Gases. In: *J Opt Soc Am B* 4 (1987), S. 595-601.
- [3] M. FERRAY, A. L'HUILLIER, X.F. LI, L.A. LOMPRES, G. MAINFRAY, C. MANUS: Multiple-Harmonic Conversion of 1064-Nm Radiation in Rare-Gases. In: *J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys.* 21 (1988), S. L31-L35.
- [4] P.B. CORKUM: Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. In: *Phys Rev Lett* 71 (1993), S. 1994-1997.
- [5] K.C. KULANDER, K.J. SCHAFER, J.L. KRAUSE, in: B. Piraux, A. L'Huillier, K. Rzażewski (Eds.), *Super-Intense Laser-Atom Physics*, Springer US, Boston, MA, 1993, pp. 95-110.
- [6] M. LEWENSTEIN, P. BALCOU, M.Y. IVANOV, A. L'HUILLIER, P.B. CORKUM: Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. In: *Phys. Rev. A* 49 (1994), S. 2117-2132.
- [7] P.B. CORKUM, N.H. BURNETT, M.Y. IVANOV: Subfemtosecond Pulses. In: *Opt. Lett.* 19 (1994), S. 1870-1872.
- [8] P.M. PAUL, E.S. TOMA, P. BREGER, G. MULLOT, F. AUGÉ, P. BALCOU, H.G. MÜLLER, P. AGOSTINI: Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. In: *Science* 292 (2001), S. 1689-1692.
- [9] T. BRABEC, C. SPIELMANN, P.F. CURLEY, F. KRAUSZ: Kerr lens mode locking. In: *Opt. Lett.* 17 (1992), S. 1292-1294.
- [10] D. STRICKLAND, G. MOUROU: Compression of amplified chirped optical pulses. In: *Opt. Commun.* 56 (1985), S. 219-221.
- [11] A. BALTUSKA, T. UDEM, M. UBERACKER, M. HENTSCHEL, E. GOULIELMAKIS, C. GOHLE, R. HOLZWARTH, V.S. YAKOVLEV, A. SCRINZI, T.W. HÄNSCH, F. KRAUSZ: Attosecond control of electronic processes by intense light fields. In: *Nature* 421 (2003), S. 611-615.
- [12] R. TREBINO, K.W. DELONG, D.N. FITTINGHOFF, J.N. SWEETSER, M.A. KRUMBUGEL, B.A. RICHMAN, D.J. KANE: Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. In: *Review of Scientific Instruments* 68 (1997), S. 3277-3295.
- [13] C. IACONIS, I.A. WALMSLEY: Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 35 (1999), S. 501-509.
- [14] J. ITATANI, F. QUERE, G.L. YUDIN, M.Y. IVANOV, F. KRAUSZ, P.B. CORKUM: Attosecond streak camera. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002).
- [15] A. HOFFMANN, M. ZÜRCH, M. GRÄFE, C. SPIELMANN: Spectral broadening and compression of sub-millijoule laser pulses in hollow-core fibers filled with sulfur hexafluoride. In: *Opt Express* 22 (2014), S. 12038-12045.
- [16] M. ZÜRCH, A. HOFFMANN, M. GRÄFE, B. LANDGRAF, M. RIEDIGER, C. SPIELMANN: Characterization of a broadband interferometric autocorrelator for visible light with ultrashort blue laser pulses. In: *Opt. Commun.* 321 (2014), S. 28-31.
- [17] M.G.O. GRÄFE, A. HOFFMANN, C. SPIELMANN: Ultrafast fluorescence spectroscopy for axial resolution of fluorophore distributions. In: *Appl. Phys. B* (2014), S. 1-8.
- [18] R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, M. ZÜRCH, A. HOFFMANN, T. GRIGOROVA, G. SAUER, A. HARTUNG, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. KOBELKE, M. CHEMNITZ, M.A. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Resonance-enhanced multi-octave supercontinuum generation in antiresonant hollow-core fibers. In: *Light: Science & Applications* 6 (2017).

- [19] B. LANDGRAF, A. HOFFMANN, D. KARTASHOV, F. GÄRTNER, Z. SAMSONOVA, P. POLYNKIN, J. JACOBY, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Generation of multi-millijoule red-shifted pulses for seeding stimulated Raman backscattering amplifiers. In: *Opt Express* 23 (2015), S. 7400-7406.
- [20] J. SERES, E. SERES, B. LANDGRAF, B. ECKER, B. AURAND, A. HOFFMANN, G. WINKLER, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Parametric amplification of attosecond pulse trains at 11 nm. In: *Scientific Reports* 4 (2014).
- [21] C. SERRAT, D. ROCA, J.M. BUDESCA, J. SERES, E. SERES, B. AURAND, A. HOFFMANN, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Avalanche of stimulated forward scattering in high harmonic generation. In: *Opt Express* 24 (2016), S. 8028-8044.
- [22] A. HOFFMANN, M. ZÜRCH, C. SPIELMANN: Extremely Nonlinear Optics Using Shaped Pulses Spectrally Broadened in an Argon- or Sulfur Hexafluoride-Filled Hollow-Core Fiber. In: *Appl. Sci.* 5 (2015), S. 1310-1322.
- [23] A. HOFFMANN, C. EGELKAMP, D. WINTERS, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Online Monitoring of Laser-Generated XUV Radiation Spectra by Surface Reflectivity Measurements with Particle Detectors. In: *Appl. Sci.* 7 (2017), S. 70.
- [24] A. APOLONSKI, A. POPPE, G. TEMPEA, C. SPIELMANN, T. UDEM, R. HOLZWARTH, T.W. HÄNSCH, F. KRAUSZ: Controlling the Phase Evolution of Few-Cycle Light Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), S. 740-743.
- [25] G. ANDRIUKAITIS, T. BALČIŪNAS, S. ALIŠAUSKAS, A. PUGŽLYS, A. BALTUŠKA, T. POPMINTCHEV, M.-C. CHEN, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN: 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier. In: *Opt. Lett.* 36 (2011), S. 2755-2757.
- [26] I.N. ROSS, J.L. COLLIER, P. MATOUSEK, C.N. DANSON, D. NEELY, R.M. ALLOTT, D.A. PEPLER, C. HERNANDEZ-GOMEZ, K. OSVAY: Generation of terawatt pulses by use of optical parametric chirped pulse amplification. In: *Appl. Opt.* 39 (2000), S. 2422-2427.
- [27] M. HOFSTETTER, M. SCHULTZE, M. FIEß, B. DENNHARDT, A. GUGGENMOS, J. GAGNON, V.S. YAKOVLEV, E. GOULIELMAKIS, R. KIENBERGER, E.M. GULLIKSON, F. KRAUSZ, U. KLEINEBERG: Attosecond dispersion control by extreme ultraviolet multilayer mirrors. In: *Opt Express* 19 (2011), S. 1767-1776.
- [28] Z. CHANG: *Fundamentals of attosecond optics*. CRC Press: Boca Raton, Fla. [u.a.], 2011.
- [29] W. DEMTRÖDER, *Laserspektroskopie 1 Grundlagen*, Springer, Berlin [u.a.], 2011.
- [30] W. DEMTRÖDER, *Laserspektroskopie 2 Experimentelle Techniken*, Springer, Berlin [u.a.], 2013.
- [31] C. RULLIÈRE (Hrsg.) *Femtosecond Laser Pulses*. Springer, 2005.
- [32] H. NIEDRIG (Hrsg.) *Optik*. de Gruyter, 2004.
- [33] J. EICHLER, H.-J. EICHLER: *Laser*. Springer, 2010.
- [34] P. O'SHEA, M. KIMMEL, X. GU, R. TREBINO: Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement. In: *Opt. Lett.* 26 (2001), S. 932-934.
- [35] R.W. BOYD: *Nonlinear Optics*. Academic Press: Burlington, 2008.
- [36] G.P. AGRAWAL: *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press, 2013.
- [37] R.L. SUTHERLAND: *Handbook of nonlinear optics*. Marcel Dekker: New York, 2003.
- [38] M.G. KUZYK, K.D. SINGER, G.I. STEGEMAN: Theory of Molecular Nonlinear Optics. In: *Adv. Opt. Photon.* 5 (2013), S. 4-82.
- [39] A. SMEKAL: Zur Quantentheorie der Dispersion. In: *Naturwissenschaften* 11 (1923), S. 873-875.
- [40] C.V. RAMAN, K.S. KRISHNAN: A new type of secondary radiation. In: *Nature* 121 (1928), S. 501-502.

- [41] C.V. RAMAN, K.S. KRISHNAN: A change of wavelength in light scattering. In: *Nature* 121 (1928), S. 619.
- [42] J.N. ANKER, W.P. HALL, O. LYANDRES, N.C. SHAH, J. ZHAO, R.P. VAN DUYN: Biosensing with plasmonic nanosensors. In: *Nature Materials* 7 (2008), S. 442-453.
- [43] E.V. EFREMOV, F. ARIESE, C. GOOIJER: Achievements in resonance Raman spectroscopy: Review of a technique with a distinct analytical chemistry potential. In: *Analytica Chimica Acta* 606 (2008), S. 119-134.
- [44] K. KNEIPP, H. KNEIPP, I. ITZKAN, R.R. DASARI, M.S. FELD: Ultrasensitive chemical analysis by Raman spectroscopy. In: *Chemical Reviews* 99 (1999), S. 2957-+.
- [45] S.M. NIE, S.R. EMERY: Probing single molecules and single nanoparticles by surface-enhanced Raman scattering. In: *Science* 275 (1997), S. 1102-1106.
- [46] J.X. CHENG, X.S. XIE: Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy: Instrumentation, theory, and applications. In: *Journal of Physical Chemistry B* 108 (2004), S. 827-840.
- [47] W. DEMTRÖDER: *Atome, Moleküle und Festkörper*. XXI, 650 S. Springer: Berlin [u.a.], 2010.
- [48] I.V. HERTEL, C.-P. SCHULZ: *Atome, Moleküle und optische Physik*. Springer: Berlin [u.a.], 2008.
- [49] I.V. HERTEL, C.-P. SCHULZ: *Atome, Moleküle und optische Physik 2 Moleküle und Photonen - Spektroskopie und Streuphysik*. Springer: Berlin, Heidelberg, 2010.
- [50] F.R. AUSSENEK, M.E. LIPPITSCH, J. BRANDMÜLLER, W. NITSCH: Collinear and noncollinear emission of anti-stokes and second order stokes Raman radiation. In: *Opt. Commun.* 37 (1981), S. 59-66.
- [51] K. BECKEN, D.D. GRAAF, C. ELSNER, G. HOFFMANN, F. KRÜGER, K. MARTENS, W. PLEHN, R. SARTORIUS, Fluorierte Treibhausgase vermeiden - Wege zum Ausstieg Umweltbundesamt, Berlin, 2010.
- [52] A. FERRE, D. STAEDTER, F. BURG, M. DAGAN, D. DESCAMPS, N. DUDOVICH, S. PETIT, H. SOIFER, V. BLANCHET, Y. MAIRESSE: High-order harmonic transient grating spectroscopy of SF₆ molecular vibrations. In: *J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys.* 47 (2014).
- [53] N.T. NGUYEN, R.R. LUCCHESI, C.D. LIN, A.T. LE: Probing and extracting the structure of vibrating SF₆ molecules with inner-shell photoelectrons. In: *Phys. Rev. A* 93 (2016).
- [54] C. LYNGBÅ, A. L'HUILLIER, C.G. WAHLSTRÖM: High-order harmonic generation in molecular gases. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 29 (1996), S. 3293.
- [55] A. FERRE, A.E. BOGUSLAVSKIY, M. DAGAN, V. BLANCHET, B.D. BRUNER, F. BURG, A. CAMPER, D. DESCAMPS, B. FABRE, N. FEDOROV, J. GAUDIN, G. GEOFFROY, J. MIKOSCH, S. PATCHKOVSKI, S. PETIT, T. RUCHON, H. SOIFER, D. STAEDTER, I. WILKINSON, A. STOLOW, N. DUDOVICH, Y. MAIRESSE: Multi-channel electronic and vibrational dynamics in polyatomic resonant high-order harmonic generation. In: *Nature Communications* 6 (2015).
- [56] N. ZHAVORONKOV: Efficient spectral conversion and temporal compression of femtosecond pulses in SF₆. In: *Opt. Lett.* 36 (2011), S. 529-531.
- [57] T. PFEIFER, R. SPITZENPFEIL, D. WALTER, C. WINTERFELDT, F. DIMLER, G. GERBER, C. SPIELMANN: Towards optimal control with shaped soft-x-ray light. In: *Opt Express* 15 (2007), S. 3409-3416.
- [58] L.G. CHRISTOPHOROU, J.K. OLTHOFF: Electron interactions with SF₆. In: *J. Phys. Chem. Ref. Data* 29 (2000), S. 267-330.
- [59] B.SCHMIDT, M.HACKER, G.STOBRAWA, T.FEURER, LAB2-A virtual femtosecond laser lab, 1998.
- [60] E.A.J. MARCATILI, R.A. SCHMELTZER: Hollow Metallic + Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission + Lasers. In: *Bell System Technical Journal* 43 (1964), S. 1783-1809.

- [61] M. NISOLI, S. DE SILVESTRI, O. SVELTO, R. SZIPOCS, K. FERENCZ, C. SPIELMANN, S. SARTANIA, F. KRAUSZ: Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), S. 522-524.
- [62] E.T.J. NIBBERING, G. GRILLON, M.A. FRANCO, B.S. PRADE, A. MYSYROWICZ: Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N₂, and O₂ by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses. In: *J Opt Soc Am B* 14 (1997), S. 650-660.
- [63] A.V. SOKOLOV, D.R. WALKER, D.D. YAVUZ, G.Y. YIN, S.E. HARRIS: Femtosecond light source for phase-controlled multiphoton ionization. In: *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001).
- [64] M.Y. SHVERDIN, D.R. WALKER, D.D. YAVUZ, G.Y. YIN, S.E. HARRIS: Generation of a single-cycle optical pulse. In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005).
- [65] G. KORN, O. DÜHR, A. NAZARKIN: Observation of Raman self-conversion of fs-pulse frequency due to impulsive excitation of molecular vibrations. In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), S. 1215-1218.
- [66] R.L. CARMAN, M.E. MACK: Experimental Investigation of Transient Stimulated Raman Scattering in a Linearly Dispersionless Medium. In: *Phys. Rev. A* 5 (1972), S. 341-348.
- [67] N.J. EVERALL, J.P. PARTANEN, J.R.M. BARR, M.J. SHAW: Threshold measurements of stimulated Raman scattering in gases using picosecond KrF laser pulses. In: *Opt. Commun.* 64 (1987), S. 393-397.
- [68] I.G. KOPRINKOV, A. SUDA, K. MIDORIKAWA: Interference between stimulated Raman scattering and self-phase modulation in pressurized methane in highly transient femtosecond pump regime. In: *Opt. Commun.* 174 (2000), S. 299-304.
- [69] M.V. AMMOISOV, N.B. DELONE, V.P. KRAINOV: Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions in a varying electromagnetic-field. In: *Zhurnal Eksperimentalnoi I Teoreticheskoi Fiziki* 91 (1986), S. 2008-2013.
- [70] T. AUGUSTE, C.F. DUTIN, A. DUBROUIL, O. GOBERT, O. HORT, E. MEVEL, S. PETIT, E. CONSTANT, D. DESCAMPS: High-energy femtosecond laser pulse compression in single- and multi-ionization regime of rare gases: experiment versus theory. In: *Appl Phys B-Lasers O* 111 (2013), S. 75-87.
- [71] N. ZHAVORONKOV, G. KORN: Generation of single intense short optical pulses by ultrafast molecular phase modulation. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002).
- [72] T. PFEIFER, D. WALTER, C. WINTERFELDT, C. SPIELMANN, G. GERBER: Controlling the spectral shape of coherent soft X-rays. In: *Appl Phys B-Lasers O* 80 (2005), S. 277-280.
- [73] M. HAMMER, E. KONIGSDORFFER, C. LIEBERMANN, C. FRAMME, G. SCHUCH, D. SCHWEITZER, J. STROBEL: Ocular fundus auto-fluorescence observations at different wavelengths in patients with age-related macular degeneration and diabetic retinopathy. In: *Graefes Archive for Clinical and Experimental Ophthalmology* 246 (2008), S. 105-114.
- [74] M. GRÄFE: *Design of ultrafast fluorescence spectroscopy for axial resolution of fluorophore distribution with low numerical apertures for ophthalmologic application*. Friedrich-Schiller-Universität Jena, Masterarbeit. 2013
- [75] A.C. BHASIKUTTAN, T. OKADA: Excited-state relaxation dynamics of Ru(dcbpy)₂(NCS)₂, studied by fluorescence upconversion spectroscopy. In: *Journal of Physical Chemistry B* 108 (2004), S. 12629-12632.
- [76] F. COUNY, F. BENABID, P.S. LIGHT: Large-pitch kagome-structured hollow-core photonic crystal fiber. In: *Opt. Lett.* 31 (2006), S. 3574-3576.
- [77] Y.Y. WANG, N.V. WHEELER, F. COUNY, P.J. ROBERTS, F. BENABID: Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber. In: *Opt. Lett.* 36 (2011), S. 669-671.

- [78] P.S. RUSSELL, P. HOLZER, W. CHANG, A. ABDOLVAND, J.C. TRAVERS: Hollow-core photonic crystal fibres for gas-based nonlinear optics. In: *Nature Photonics* 8 (2014), S. 278-286.
- [79] J.M. DUDLEY, G. GENTY, S. COEN: Supercontinuum generation in photonic crystal fiber. In: *Rev. Mod. Phys.* 78 (2006), S. 1135-1184.
- [80] A.M. HEIDT: Pulse preserving flat-top supercontinuum generation in all-normal dispersion photonic crystal fibers. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 27 (2010), S. 550-559.
- [81] M. CHEMNITZ, J. WEI, C. JAIN, B.P. RODRIGUES, T. WIEDUWILT, J. KOBELKE, L. WONDRAKZEK, M.A. SCHMIDT: Octave-spanning supercontinuum generation in hybrid silver metaphosphate/silica step-index fibers. In: *Opt. Lett.* 41 (2016), S. 3519-3522.
- [82] N. GRANZOW, M.A. SCHMIDT, W. CHANG, L. WANG, Q. COULOMBIER, J. TROLES, P. TOUPIN, I. HARTL, K.F. LEE, M.E. FERMAN, L. WONDRAKZEK, P.S.J. RUSSELL: Mid-infrared supercontinuum generation in As₂S₃-silica “nano-spike” step-index waveguide. In: *Opt Express* 21 (2013), S. 10969-10977.
- [83] W. BELARDI: Design and Properties of Hollow Antiresonant Fibers for the Visible and Near Infrared Spectral Range. In: *Journal of Lightwave Technology* 33 (2015), S. 4497-4503.
- [84] A. HARTUNG, J. KOBELKE, A. SCHWUCHOW, K. WONDRAKZEK, J. BIERLICH, J. POPP, T. FROSCH, M.A. SCHMIDT: Double antiresonant hollow core fiber – guidance in the deep ultraviolet by modified tunneling leaky modes. In: *Opt Express* 22 (2014), S. 19131-19140.
- [85] M. ZEISBERGER, A. TUNIZ, M.A. SCHMIDT: Analytic model for the complex effective index dispersion of metamaterial-cladding large-area hollow core fibers. In: *Opt Express* 24 (2016), S. 20515-20528.
- [86] W. BELARDI, J.C. KNIGHT: Hollow antiresonant fibers with low bending loss. In: *Opt Express* 22 (2014), S. 10091-10096.
- [87] A. HARTUNG, J. KOBELKE, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. POPP, M.A. SCHMIDT, T. FROSCH: Low-loss single-mode guidance in large-core antiresonant hollow-core fibers. In: *Opt. Lett.* 40 (2015), S. 3432-3435.
- [88] A. PRÄKELT, M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN, A. ASSION, T. BAUMERT: Filling a spectral hole via self-phase modulation. In: *Appl. Phys. Lett.* 87 (2005), S. 121113.
- [89] T. GRIGOROVA: *Characterization of novel anti-resonant hollow-core fiber for supercontinuum generation*. Friedrich-Schiller-Universität Jena, Masterarbeit. 2017
- [90] S.A. MOUSAVI, S.R. SANDOGHCHI, D.J. RICHARDSON, F. POLETTI: Broadband high birefringence and polarizing hollow core antiresonant fibers. In: *Opt Express* 24 (2016), S. 22943-22958.
- [91] P.J. ROBERTS, D.P. WILLIAMS, H. SABERT, B.J. MANGAN, D.M. BIRD, T.A. BIRKS, J.C. KNIGHT, P.S.J. RUSSELL: Design of low-loss and highly birefringent hollow-core photonic crystal fiber. In: *Opt Express* 14 (2006), S. 7329-7341.
- [92] J.H. MCLEOD: The axicon - a new type of optical element. In: *Journal of the Optical Society of America* 44 (1954), S. 592-597.
- [93] S.N. KURILKINA, A.A. RYZHEVICH, S.B. BUSHUK, S.V. SOLONEVICH: Features of the formation of a femtosecond Bessel beam by using an axicon. In: *Quantum Electronics* 38 (2008), S. 349-353.
- [94] B.D. LU, Z.J. LIU: Propagation properties of ultrashort pulsed Bessel beams in dispersive media. In: *Journal of the Optical Society of America a-Optics Image Science and Vision* 20 (2003), S. 582-587.
- [95] P. POLYNKIN: Intense femtosecond shaped laser beams for writing extended structures inside transparent dielectrics. In: *Applied Physics a-Materials Science & Processing* 114 (2014), S. 143-149.

- [96] T.A. PLANCHON, L. GAO, D.E. MILKIE, M.W. DAVIDSON, J.A. GALBRAITH, C.G. GALBRAITH, E. BETZIG: Rapid three-dimensional isotropic imaging of living cells using Bessel beam plane illumination. In: *Nature Methods* 8 (2011), S. 417-468.
- [97] J. ARLT, V. GARCES-CHAVEZ, W. SIBBETT, K. DHOLAKIA: Optical micromanipulation using a Bessel light beam. In: *Opt. Commun.* 197 (2001), S. 239-245.
- [98] A.T. FRIBERG: Stationary-phase analysis of generalized axicons. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 13 (1996), S. 743-750.
- [99] L.R. STAROŃSKI, J. SOCHACKI, A. KOŁODZIEJCZYK, Z. JAROSZEWICZ: Lateral distribution and flow of energy in uniform-intensity axicons. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 9 (1992), S. 2091-2094.
- [100] S. KLEWITZ, S. SOGOMONIAN, M. WOERNER, S. HERMINGHAUS: Stimulated Raman scattering of femtosecond Bessel pulses. In: *Opt. Commun.* 154 (1998), S. 186-190.
- [101] A. DUBIETIS, P. POLESANA, G. VALIULIS, A. STABINIS, P. DI TRAPANI, A. PISKARSKAS: Axial emission and spectral broadening in self-focusing of femtosecond Bessel beams. In: *Opt Express* 15 (2007), S. 4168-4175.
- [102] S.P. TEWARI, H. HUANG, R.W. BOYD: Theory of self-phase-matching. In: *Phys. Rev. A* 51 (1995), S. R2707-R2710.
- [103] M. SCHELLER, M.S. MILLS, M.A. MIRI, W.B. CHENG, J.V. MOLONEY, M. KOLESIK, P. POLYNKIN, D.N. CHRISTODOULIDES: Externally refuelled optical filaments. In: *Nature Photonics* 8 (2014), S. 297-301.
- [104] M. SCHELLER, X. CHEN, G.O. ARIUNBOLD, N. BORN, J. MOLONEY, M. KOLESIK, P. POLYNKIN: Raman conversion in intense femtosecond Bessel beams in air. In: *Phys. Rev. A* 89 (2014).
- [105] G.A. MOUROU, N.J. FISCH, V.M. MALKIN, Z. TOROKER, E.A. KHAZANOV, A.M. SERGEEV, T. TAJIMA, B. LE GARREC: Exawatt-Zettawatt pulse generation and applications. In: *Opt. Commun.* 285 (2012), S. 720-724.
- [106] V.M. MALKIN, G. SHVETS, N.J. FISCH: Fast compression of laser beams to highly overcritical powers. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), S. 4448-4451.
- [107] J. REN, W.F. CHENG, S.L. LI, S. SUCKEWER: A new method for generating ultraintense and ultrashort laser pulses. In: *Nature Physics* 3 (2007), S. 732-736.
- [108] G. VIEUX, A. LYACHEV, X. YANG, B. ERSFELD, J.P. FARMER, E. BRUNETTI, R.C. ISSAC, G. RAJ, G.H. WELSH, S.M. WIGGINS, D.A. JAROSZYNSKI: Chirped pulse Raman amplification in plasma. In: *New Journal of Physics* 13 (2011), S. 063042.
- [109] G. SHVETS, N.J. FISCH, A. PUKHOV, J. MEYER-TER-VEHN: Superradiant amplification of an ultrashort laser pulse in a plasma by a counterpropagating pump. In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), S. 4879-4882.
- [110] Z. TOROKER, V.M. MALKIN, A.A. BALAKIN, G.M. FRAIMAN, N.J. FISCH: Geometrical constraints on plasma couplers for Raman compression. In: *Physics of Plasmas* 19 (2012).
- [111] H. WANG, C. FAN, P. ZHANG, C. QIAO, J. ZHANG, H. MA: Light filaments with higher-order Kerr effect. In: *Opt Express* 18 (2010), S. 24301-24306.
- [112] L. PLAJA, R. TORRES, A. ZÄIR: *Attosecond physics attosecond measurements and control of physical systems*. Springer: Berlin [u.a.], 2013.
- [113] T. SCHULTZ, M. VRAKING: *Attosecond and XUV physics ultrafast dynamics and spectroscopy*. Wiley-VCH: Weinheim, 2014.
- [114] D.T. ATTWOOD: *Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation principles and applications*. XVI, 470 S. Cambridge Univ. Press: Cambridge [u.a.], 2007.
- [115] M.B. GAARDE, F. SALIN, E. CONSTANT, P. BALCOU, K.J. SCHAFER, K.C. KULANDER, A. L'HUILLIER: Spatiotemporal separation of high harmonic radiation into two quantum path components. In: *Phys. Rev. A* 59 (1999), S. 1367-1373.

- [116] M. HÖGNER, HHGmax, <http://www.attoworld.de/hhgmax/index.html>, 2015.
- [117] P. SALIÈRES, A. L'HUILLIER, M. LEWENSTEIN: Coherence Control of High-Order Harmonics. In: *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995), S. 3776-3779.
- [118] B.L. HENKE, E.M. GULLIKSON, J.C. DAVIS: X-Ray Interactions - Photoabsorption, Scattering, Transmission, And Reflection At $E=50\text{-}30,000$ eV, $Z=1\text{-}92$. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 54 (1993), S. 181-342.
- [119] E. CONSTANT, D. GARZELLA, P. BREGER, E. MÉVEL, C. DORRER, C. LE BLANC, F. SALIN, P. AGOSTINI: Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), S. 1668-1671.
- [120] M. SCHNÜRER, Z. CHENG, S. SARTANIA, M. HENTSCHEL, G. TEMPEA, T. BRABEC, F. KRAUSZ: Guiding and high-harmonic generation of sub-10-fs pulses in hollow-core fibers at 1015 W/cm^2 . In: *Appl. Phys. B* 67 (1998), S. 263-266.
- [121] S.J. GOH, Y. TAO, P.J.M. VAN DER SLOT, H.J.M. BASTIAENS, J. HEREK, S.G. BIEDRON, M.B. DANAILOV, S.V. MILTON, K.J. BOLLER: Single-shot fluctuations in waveguided high-harmonic generation. In: *Opt Express* 23 (2015), S. 24888-24902.
- [122] R.L. SANDBERG, A. PAUL, D.A. RAYMONDSON, S. HÄDRICH, D.M. GAUDIOSI, J. HOLTSNIDER, R.A.I. TOBEY, O. COHEN, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN, C. SONG, J. MIAO, Y. LIU, F. SALMASSI: Lensless Diffractive Imaging Using Tabletop Coherent High-Harmonic Soft-X-Ray Beams. In: *Phys. Rev. Lett.* 99 (2007), S. 098103.
- [123] S. WITTE, V.T. TENNER, D.W.E. NOOM, K.S.E. EIKEMA: Lensless diffractive imaging with ultra-broadband table-top sources: from infrared to extreme-ultraviolet wavelengths. In: *Light Sci Appl* 3 (2014), S. e163.
- [124] C. WINTERFELDT, C. SPIELMANN, G. GERBER: Colloquium: Optimal control of high-harmonic generation. In: *Rev. Mod. Phys.* 80 (2008), S. 117-140.
- [125] X. WANG, C. JIN, C.D. LIN: Coherent control of high-harmonic generation using waveform-synthesized chirped laser fields. In: *Phys. Rev. A* 90 (2014).
- [126] C. SPIELMANN, N.H. BURNETT, S. SARTANIA, R. KOPPITSCH, M. SCHNÜRER, C. KAN, M. LENZNER, P. WOBRAUSCHEK, F. KRAUSZ: Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses. In: *Science* 278 (1997), S. 661-664.
- [127] J. SERES, E. SERES, A.J. VERHOEF, G. TEMPEA, C. STRELILL, P. WOBRAUSCHEK, V. YAKOVLEV, A. SCRINZI, C. SPIELMANN, F. KRAUSZ: Source of coherent kiloelectronvolt X-rays. In: *Nature* 433 (2005), S. 596-596.
- [128] E. SERES, J. SERES, F. KRAUSZ, C. SPIELMANN: Generation of coherent soft-x-ray radiation extending far beyond the titanium L edge. In: *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004).
- [129] Y. PERTOT, C. SCHMIDT, M. MATTHEWS, A. CHAUVET, M. HUPPERT, V. SVOBODA, A. VON CONTA, A. TEHLAR, D. BAYKUSHEVA, J.P. WOLF, H.J. WÖRNER: Time-resolved x-ray absorption spectroscopy with a water window high-harmonic source. In: *Science* 355 (2017), S. 264-+.
- [130] T. POPMINTCHEV, M.C. CHEN, D. POPMINTCHEV, P. ARPIN, S. BROWN, S. ALISAUSKAS, G. ANDRIUKAITIS, T. BALCIUNAS, O.D. MUCKE, A. PUGZLYS, A. BALTUSKA, B. SHIM, S.E. SCHRAUTH, A. GAETA, C. HERNANDEZ-GARCIA, L. PLAJA, A. BECKER, A. JARON-BECKER, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN: Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers. In: *Science* 336 (2012), S. 1287-1291.
- [131] A. GUGGENMOS, M. JOBST, M. OSSIANDER, S. RADUNZ, J. RIEMENSBERGER, M. SCHAFFER, A. AKIL, C. JAKUBEIT, P. BOHM, S. NOEVER, B. NICKEL, R. KIENBERGER, U. KLEINEBERG: Chromium/scandium multilayer mirrors for isolated attosecond pulses at 145 eV. In: *Opt. Lett.* 40 (2015), S. 2846-2849.
- [132] R. SPITZENPFEIL, S. EYRING, C. KERN, C. OTT, J. LOHBREIER, J. HENNEBERGER, N. FRANKE, S. JUNG, D. WALTER, M. WEGER, C. WINTERFELDT, T. PFEIFER, C. SPIELMANN: Enhancing the

- brilliance of high-harmonic generation. In: *Applied Physics a-Materials Science & Processing* 96 (2009), S. 69-81.
- [133] C.M. HEYL, H. COUDERT-ALTEIRAC, M. MIRANDA, M. LOUISY, K. KOVACS, V. TOSA, E. BALOGH, K. VARJU, A. L'HUILLIER, A. COUAIRON, C.L. ARNOLD: Scale-invariant nonlinear optics in gases. In: *Optica* 3 (2016), S. 75-81.
- [134] N. LEMOS, N. LOPES, J.M. DIAS, F. VIOLA: Design and characterization of supersonic nozzles for wide focus laser-plasma interactions. In: *Review of Scientific Instruments* 80 (2009), S. 103301.
- [135] P. RUDAWSKI, C.M. HEYL, F. BRIZUELA, J. SCHWENKE, A. PERSSON, E. MANSTEN, R. RAKOWSKI, L. RADING, F. CAMPI, B. KIM, P. JOHNSON, A. L'HUILLIER: A high-flux high-order harmonic source. In: *Review of Scientific Instruments* 84 (2013).
- [136] E.J. TAKAHASHI, Y. NABEKAWA, K. MIDORIKAWA: Low-divergence coherent soft x-ray source at 13 nm by high-order harmonics. In: *Appl. Phys. Lett.* 84 (2004), S. 4-6.
- [137] M. ZÜRCH, J. ROTHHARDT, S. HÄDRICH, S. DEMMLER, M. KREBS, J. LIMPET, A. TÜNNERMANN, A. GUGGENMOS, U. KLEINEBERG, C. SPIELMANN: Real-time and Sub-wavelength Ultrafast Coherent Diffraction Imaging in the Extreme Ultraviolet. In: *Scientific Reports* 4 (2014).
- [138] M. ZÜRCH, C. KERN, C. SPIELMANN: XUV coherent diffraction imaging in reflection geometry with low numerical aperture. In: *Opt Express* 21 (2013), S. 21131-21147.
- [139] A. HAGE, B. LANDGRAF, M. TAYLOR, M. WÜNSCHE, T. GANGOLF, H. HÖPPNER, M.J. PRANDOLINI, R. RIEDEL, M. SCHULZ, F. TAVELLA, A. WILLNER, M. YEUNG, G.G. PAULUS, C. SPIELMANN, B. DROMEY, M. ZEPF: New design of a multi-jet target for quasi phase matching. In: *Review of Scientific Instruments* 85 (2014), S. 103105.
- [140] Y. LIANG, S. AUGST, S.L. CHIN, Y. BEAUDOIN, M. CHAKER: High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using intense picosecond laser pulses-a comparison. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 27 (1994), S. 5119.
- [141] D.J. FRASER, M.H.R. HUTCHINSON, J.P. MARANGOS, Y.L. SHAO, J.W.G. TISCH, M. CASTILLEJO: High harmonic generation in butane and butadiene. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 28 (1995), S. L739.
- [142] H. SAKAI, K. MIYAZAKI: High-order harmonic generation in nitrogen molecules with subpicosecond visible dye-laser pulses. In: *Appl. Phys. B* 61 (1995), S. 493-498.
- [143] J.L. KRAUSE, K.J. SCHAFER, K.C. KULANDER: Optical harmonic generation in atomic and molecular hydrogen. In: *Chem. Phys. Lett.* 178 (1991), S. 573-578.
- [144] M. PLUMMER, J.F. MCCANN: Harmonic generation in H_2^+ from ultrashort, intense laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 28 (1995), S. L119.
- [145] N. MOISEYEV, M. CHRYSOS, O. ATABEK, R. LEFEBVRE: Harmonic generation in molecular systems: application to H_2^+ in intense laser fields. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 28 (1995), S. 2007.
- [146] K. DOTA, A.K. DHARMADHIKARI, J.A. DHARMADHIKARI, K. PATRA, A.K. TIWARI, D. MATHUR: A search for the sulphur hexafluoride cation with intense, few cycle laser pulses. In: *J. Chem. Phys.* 139 (2013).
- [147] Z.B. WALTERS, S. TONZANI, C.H. GREENE: High harmonic generation in SF₆: Raman-excited vibrational quantum beats. In: *J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys.* 40 (2007), S. F277-F283.
- [148] N.L. WAGNER, A. WUEST, I.P. CHRISTOV, T. POPMINTCHEV, X.B. ZHOU, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN: Monitoring molecular dynamics using coherent electrons from high harmonic generation. In: *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 103 (2006), S. 13279-13285.
- [149] E.A. GIBSON, A. PAUL, N. WAGNER, R. TOBEY, ANAN, D. GAUDIOSI, S. BACKUS, I.P. CHRISTOV, A. AQUILA, E.M. GULLIKSON, D.T. ATTWOOD, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN: Coherent Soft X-ray Generation in the Water Window with Quasi-Phase Matching. In: *Science* 302 (2003), S. 95.

- [150] A. PAUL, R.A. BARTELS, R. TOBEY, H. GREEN, S. WEIMAN, I.P. CHRISTOV, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN, S. BACKUS: Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light. In: *Nature* 421 (2003), S. 51-54.
- [151] A.L. LYTLE, X. ZHANG, R.L. SANDBERG, O. COHEN, H.C. KAPTEYN, M.M. MURNANE: Quasi-phase matching and characterization of high-order harmonic generation in hollow waveguides using counterpropagating light. In: *Opt Express* 16 (2008), S. 6544-6566.
- [152] X. ZHANG, A.L. LYTLE, T. POPMINTCHEV, X. ZHOU, H.C. KAPTEYN, M.M. MURNANE, O. COHEN: Quasi-phase-matching and quantum-path control of high-harmonic generation using counterpropagating light. In: *Nat Phys* 3 (2007), S. 270-275.
- [153] J. SERES, V.S. YAKOVLEV, E. SERES, C. STRELI, P. WOBRAUSCHEK, C. SPIELMANN, F. KRAUSZ: Coherent superposition of laser-driven soft-X-ray harmonics from successive sources. In: *Nature Physics* 3 (2007), S. 878-883.
- [154] A. PIRRI, C. CORSI, M. BELLINI: Enhancing the yield of high-order harmonics with an array of gas jets. In: *Phys. Rev. A* 78 (2008).
- [155] A. WILLNER, A. HAGE, R. RIEDEL, I. GRGURAS, A. SIMONCIG, M. SCHULZ, T. DZELZAINIS, H. HOPPNER, S. HUBER, M.J. PRANDOLINI, B. DROMEY, M. ZEPF, A.L. CAVALIERI, F. TAVELLA: Coherent spectral enhancement of carrier-envelope-phase stable continua with dual-gas high harmonic generation. In: *Opt. Lett.* 37 (2012), S. 3672-3674.
- [156] I. HADAS, A. BAHABAD: Periodic density modulation for quasi-phase-matching of optical frequency conversion is inefficient under shallow focusing and constant ambient pressure. In: *Opt. Lett.* 41 (2016), S. 4000-4003.
- [157] A. HEINRICH, W. KORNELIS, M.P. ANSCOMBE, C.P. HAURI, P. SCHLUP, J. BIEGERT, U. KELLER: Enhanced VUV-assisted high harmonic generation. In: *J. Phys. B-At. Mol. Opt. Phys.* 39 (2006), S. S275-S281.
- [158] F. BRIZUELA, C.M. HEYL, P. RUDAWSKI, D. KROON, L. RADING, J.M. DAHLSTROM, J. MAURITSSON, P. JOHNSON, C.L. ARNOLD, A. L'HUILLIER: Efficient high-order harmonic generation boosted by below-threshold harmonics. In: *Scientific Reports* 3 (2013).
- [159] G. GADEMANN, F. KELKENSBERG, W.K. SIU, P. JOHNSON, M.B. GAARDE, K.J. SCHAFER, M.J.J. VRAKKING: Attosecond control of electron-ion recollision in high harmonic generation. In: *New Journal of Physics* 13 (2011).
- [160] E.J. TAKAHASHI, T. KANAI, K.L. ISHIKAWA, Y. NABEKAWA, K. MIDORIKAWA: Dramatic enhancement of high-order harmonic generation. In: *Phys. Rev. Lett.* 99 (2007).
- [161] J. SERES, E. SERES, D. HOCHHAUS, B. ECKER, D. ZIMMER, V. BAGNOUD, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Laser-driven amplification of soft X-rays by parametric stimulated emission in neutral gases. In: *Nature Physics* 6 (2010), S. 455-461.
- [162] J. SERES, E. SERES, C. SPIELMANN: Classical model of strong-field parametric amplification of soft x rays. In: *Phys. Rev. A* 86 (2012).
- [163] S. KAZAMIAS, S. DABOUSSI, O. GUILBAUD, K. CASSOU, C. MONTET, O. NEVEU, B. CROS, D. ROS, G. MAYNARD: The super-quadratic growth of high-harmonic signal as a function of pressure. In: *Nature Physics* 6 (2010), S. 927-927.
- [164] S. KAZAMIAS, S. DABOUSSI, O. GUILBAUD, K. CASSOU, D. ROS, B. CROS, G. MAYNARD: Pressure-induced phase matching in high-order harmonic generation. In: *Phys. Rev. A* 83 (2011).
- [165] C. SERRAT: Coherent Extreme Ultraviolet Light Amplification by Strong-Field-Enhanced Forward Scattering. In: *Phys. Rev. Lett.* 111 (2013).
- [166] C. SERRAT: Intrapulse x-ray parametric amplification in high-order-harmonic generation. In: *Phys. Rev. A* 93 (2016).
- [167] C. SERRAT, D. ROCA, J. SERES: Coherent amplification of attosecond light pulses in the water-window spectral region. In: *Opt Express* 23 (2015), S. 4867-4872.

- [168] E. SERES, J. SERES, C. SERRAT, S. NAMBA: Core-level attosecond transient absorption spectroscopy of laser-dressed solid films of Si and Zr. In: *Physical Review B* 94 (2016).
- [169] C. SERRAT: Comment on "Coherent Extreme Ultraviolet Light Amplification by Strong-Field-Enhanced Forward Scattering" Reply. In: *Phys. Rev. Lett.* 117 (2016).
- [170] T. BREDTMANN, S. PATCHKOVSKII, M. IVANOV: Comment on "Coherent Extreme Ultraviolet Light Amplification by Strong-Field-Enhanced Forward Scattering". In: *Phys. Rev. Lett.* 117 (2016).
- [171] T. BREDTMANN, S. CHELKOWSKI, A.D. BANDRAUK, M. IVANOV: XUV lasing during strong-field-assisted transient absorption in molecules. In: *Phys. Rev. A* 93 (2016).
- [172] A.M. WEINER, D.E. LEAIRD, J.S. PATEL, J.R. WULLERT: Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator. In: *Opt. Lett.* 15 (1990), S. 326-328.
- [173] E. ZEEK, K. MAGINNIS, S. BACKUS, U. RUSSEK, M. MURNANE, G. MOUROU, H. KAPTEYN, G. VDOVIN: Pulse compression by use of deformable mirrors. In: *Opt. Lett.* 24 (1999), S. 493-495.
- [174] F. VERLUISE, V. LAUDE, Z. CHENG, C. SPIELMANN, P. TOURNOIS: Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping. In: *Opt. Lett.* 25 (2000), S. 575-577.
- [175] T. PFEIFER, R. KEMMER, R. SPITZENPFEIL, D. WALTER, C. WINTERFELDT, G. GERBER, C. SPIELMANN: Spatial control of high-harmonic generation in hollow fibers. In: *Opt. Lett.* 30 (2005), S. 1497-1499.
- [176] S.J. GOH, J. REININK, Y. TAO, P.J.M. VAN DER SLOT, H.J.M. BASTIAENS, J.L. HEREK, S.G. BIEDRON, S.V. MILTON, K.J. BOLLER: Spectral control of high-harmonic generation via drive laser pulse shaping in a wide-diameter capillary. In: *Opt Express* 24 (2016), S. 1604-1615.
- [177] D.H. REITZE, S. KAZAMIAS, F. WEIHE, G. MULLOT, D. DOUILLET, F. AUGÉ, O. ALBERT, V. RAMANATHAN, J.P. CHAMBARET, D. HULIN, P. BALCOU: Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control. In: *Opt. Lett.* 29 (2004), S. 86-88.
- [178] A. HOFFMANN: *Aufbau eines Messplatzes für zeitaufgelöste Spektroskopie mit geformten XUV-Pulsen*. Friedrich-Schiller-Universität Jena, Diplomarbeit. 2010
- [179] I.P. CHRISTOV, R. BARTELS, H.C. KAPTEYN, M.M. MURNANE: Attosecond Time-Scale Intra-atomic Phase Matching of High Harmonic Generation. In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), S. 5458-5461.
- [180] T. PFEIFER, D. WALTER, C. WINTERFELDT, C. SPIELMANN, G. GERBER: Controlling the spectral shape of coherent soft X-rays. In: *Appl. Phys. B* 80 (2005), S. 277-280.
- [181] R. BARTELS, S. BACKUS, E. ZEEK, L. MISOGUTI, G. VDOVIN, I.P. CHRISTOV, M.M. MURNANE, H.C. KAPTEYN: Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays. In: *Nature* 406 (2000), S. 164-166.
- [182] R. KIENBERGER, E. GOULIELMAKIS, M. UIBERACKER, A. BALTUSKA, V. YAKOVLEV, F. BAMMER, A. SCRINZI, T. WESTERWALBESLOH, U. KLEINEBERG, U. HEINZMANN, M. DRESCHER, F. KRAUSZ: Atomic transient recorder. In: *Nature* 427 (2004), S. 817-821.
- [183] W. MENGXI, C. SHAOHAO, C. SETH, J.S. KENNETH, B.G. METTE: Theory of strong-field attosecond transient absorption. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 49 (2016), S. 062003.
- [184] M. SCHULTZE, A. WIRTH, I. GRGURAS, M. UIBERACKER, T. UPHUES, A.J. VERHOEF, J. GAGNON, M. HOFSTETTER, U. KLEINEBERG, E. GOULIELMAKIS, F. KRAUSZ: State-of-the-art attosecond metrology. In: *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 184 (2011), S. 68-77.
- [185] H. MASHIKO, A. SUDA, K. MIDORIKAWA: Focusing coherent soft-x-ray radiation to a micrometer spot size with an intensity of $10(14) \text{ W/cm}^2$. In: *Opt. Lett.* 29 (2004), S. 1927-1929.

7. Publikationsliste

Zeitschriftenartikel (peer-review)

M. GRÄFE, **A. HOFFMANN**, C. SPIELMANN: Ultrafast fluorescence spectroscopy for axial resolution of fluorophore distributions. In: *Appl. Phys. B* (2014), S. 1-8.

A. HOFFMANN, M. ZÜRCH, M. GRÄFE, C. SPIELMANN: Spectral broadening and compression of sub-millijoule laser pulses in hollow-core fibers filled with sulfur hexafluoride. In: *Optics Express* 22 (2014), S. 12038-12045.

M. ZÜRCH, **A. HOFFMANN**, M. GRÄFE, B. LANDGRAF, M. RIEDIGER, C. SPIELMANN: Characterization of a broadband interferometric autocorrelator for visible light with ultrashort blue laser pulses. In: *Opt. Commun.* 321 (2014), S. 28-31.

J. SERES, E. SERES, B. LANDGRAF, B. ECKER, B. AURAND, **A. HOFFMANN**, G. WINKLER, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Parametric amplification of attosecond pulse trains at 11 nm. In: *Scientific Reports* 4 (2014).

B. LANDGRAF, **A. HOFFMANN**, D. KARTASHOV, F. GÄRTNER, Z. SAMSONOVA, P. POLYNKIN, J. JACOBY, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Generation of multi-millijoule red-shifted pulses for seeding stimulated Raman backscattering amplifiers. In: *Optics Express* 23 (2015), S. 7400-7406.

A. HOFFMANN, M. ZÜRCH, C. SPIELMANN: Extremely Nonlinear Optics Using Shaped Pulses Spectrally Broadened in an Argon- or Sulfur Hexafluoride-Filled Hollow-Core Fiber. In: *Appl. Sci.* 5 (2015), S. 1310-1322.

C. SERRAT, D. ROCA, J.M. BUDESCA, J. SERES, E. SERES, B. AURAND, **A. HOFFMANN**, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Avalanche of stimulated forward scattering in high harmonic generation. In: *Opt Express* 24 (2016), S. 8028-8044.

A. HOFFMANN, C. EGELKAMP, D. WINTERS, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Online Monitoring of Laser-Generated XUV Radiation Spectra by Surface Reflectivity Measurements with Particle Detectors. In: *Appl. Sci.* 7 (2017), 70

R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, M. ZÜRCH, **A. HOFFMANN**, T. GRIGOROVA, G. SAUER, A. HARTUNG, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. KOBELKE, M. CHEMNITZ, M.A. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Resonance enhanced multi-octave supercontinuum generation in antiresonant hollow-core fibers. (akzeptiert für Light: Science and Applications 2017), arxiv.org/abs/1701.03540.

B. LANDGRAF, F. GÄRTNER, G. LEHMANN, **A. HOFFMANN**, Z. SAMSONOVA, D. KARTASHOV, J. JACOBY, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Towards stable and efficient ultra-short pulse amplification in plasmas. (in Vorbereitung 2017)

Konferenzbeiträge

M. GRÄFE, **A. HOFFMANN**, C. SPIELMANN: Design of ultrafast fluorescence spectroscopy for axial resolution of fluorophore distribution with low numerical apertures for ophthalmologic application (DokDok 2012, Oppung)

M. GRÄFE, **A. HOFFMANN**, C. SPIELMANN: Design of ultrafast fluorescence spectroscopy for axial resolution of fluorophore distribution with low numerical apertures for ophthalmologic application (DPG Frühjahrstagung 2013, Hannover)

M. GRÄFE, **A. HOFFMANN**, C. SPIELMANN: Determination of axial fluorophore distributions without strong focusing apertures using noncollinear optical parametric amplification (CLEO Europe 2013, München)

J. SERES, E. SERES, B. LANDGRAF, B. ECKER, B. AURAND, **A. HOFFMANN**, G. WINKLER, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Attosecond dynamics of parametric amplification at 11 nm (OEPG Jahrestagung 2014, Pöhlau)

M. ZÜRCH, A. GUGGENMOS, C. M. HEYL, B. LANDGRAF, **A. HOFFMANN**, C. SPAETH, R. HOLLINGER, S. NAMBA, U. KLEINEBERG, C. SPIELMANN: Narrow-band high harmonic emission at 100eV from an optimized generation geometry driven by an ultrafast 40mJ table-top laser (3rd International Conference on Correlation Effects in Radiation Fields 2014, Rostock)

D. KARTASHOV, S. ALISAUSKAS, G. ANDRIUKAITIS, A. PUGZLYS, S. HAESSLER, A. BALTUSKA, M. SHNEIDER, B. LANDGRAF, **A. HOFFMANN**, C. SPIELMANN, P. POLYNKIN, A. MITROFANOV, D. SIDOROV-BIRYUKOV, A. ZHELIKOV, J. MÖHRING, D. STARUKHIN, M. MOTZKUS, M. IVANOV, M. RICHTER, F. MORALES: Standoff Sources of Coherent Radiation Initiated by Femtosecond Filaments (CLEO 2015, San Jose)

- R. SOLLAPUR, M. ZÜRCH, D. KARTASHOV, **A. HOFFMANN**, G. SAUER, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Nonlinear optics in gas-filled hollow-core fibers in the near- and mid-IR (DokDok 2015, Eisenach)
- M. ZÜRCH, R. SOLLAPUR, **A. HOFFMANN**, G. SAUER, A. HARTUNG, D. KARTASHOV, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Octave Broadband Supercontinuum Generation in Gas-Filled Anti-Resonant Hollow-Core Fiber (CLEO 2016, San Jose)
- C. SERRAT, D. ROCA, J. BUDESCA, J. SERES, E. SERES, B. AURAND, **A. HOFFMANN**, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Avalanche effect and gain saturation in high harmonic generation (EPS-QEOD Europhoton Conference 2016, Wien)
- A. HOFFMANN**, M. ZÜRCH, R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, T. GRIGOROVA, G. SAUER, A. HARTUNG, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Scaling supercontinuum generation in gas-filled hollow-core fibers (EPS-QEOD Europhoton Conference 2016, Wien)
- R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, **A. HOFFMANN**, M. ZÜRCH, T. GRIGOROVA, A. HARTUNG, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Multi-octave spectral broadening in Anti-Resonant Hollow-Core Fiber (OSA Foundation Siegman International School on Lasers 2016, Barcelona)
- T. GRIGOROVA, **A. HOFFMANN**, R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, A. HARTUNG, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Dispersion measurements of a novel anti-resonant hollow-core fiber (DokDok 2016, Oppung)
- M. ZÜRCH, R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, **A. HOFFMANN**, T. GRIGOROVA, G. SAUER, A. HARTUNG, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. KOBELKE, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Multi-octave supercontinuum driven by soliton explosion in dispersion-designed antiresonant hollow-core fibers (CLEO 2017, San Jose)
- T. GRIGOROVA, R. SOLLAPUR, **A. HOFFMANN**, D. KARTASHOV, M. ZÜRCH, A. HARTUNG, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. KOBELKE, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Dispersion Measurement of Engineered Antiresonant Hollow-Core Fibers with Spectral Interferometry (CLEO Europe 2017, München)
- R. SOLLAPUR, D. KARTASHOV, M. ZÜRCH, **A. HOFFMANN**, T. GRIGOROVA, A. HARTUNG, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. KOBELKE, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Dispersion-Designed Antiresonant Hollow-Core Fibers for Supercontinuum Generation by Soliton Explosion (CLEO Europe 2017, München)
- N. JAYAKUMAR, **A. HOFFMANN**, R. SOLLAPUR, T. GRIGOROVA, A. HARTUNG, A. SCHWUCHOW, J. BIERLICH, J. KOBELKE, M. SCHMIDT, C. SPIELMANN: Polarization Evolution in Anti-Resonant Hollow-Core Fibers (DokDok 2017, Suhl)
- Z. SAMSONOVA, S. HÖFER, V. KAYMAK, **A. HOFFMANN**, S. ALISAUSKAS, I. USCHMANN, S. KROKER, O. ROSMEJ, L. TREFFLICH, A. PUGZLYS, C. RONNING, E. FÖRSTER, A. PUKHOV, A. BALTUSKA C. SPIELMANN, D. KARTASHOV: Relativistic interaction of nanostructured solids with short and long wavelength ultrashort laser pulses (10th International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications 2017, St. Malo)

Proceedings

- J. SERES, E. SERES, B. LANDGRAF, B. ECKER, B. AURAND, **A. HOFFMANN**, G. WINKLER, S. NAMBA, T. KUEHL, C. SPIELMANN: Attosecond dynamics of parametric amplification at 11 nm. In: X-Ray Lasers 2014, Springer, DOI 10.1007/978-3-319-19521-6, S. 173-178.
- Z. SAMSONOVA, S. HÖFER, **A. HOFFMANN**, B. LANDGRAF, M. ZÜRCH, I. USCHMANN, D. KHAGHANI, O. ROSMEJ, P. NEUMAYER, R. RÖDER, L. TREFFLICH, C. RONNING, E. FÖRSTER, C. SPIELMANN, D. KARTASHOV: X-Ray Emission Generated By Laser-Produced Plasmas From Dielectric Nanostructured Targets. In: 19th International Conference on Atomic Processes in Plasmas 2016, AIP, DOI 10.1063/1.4975743

Artikel (sonstige)

- B. LANDGRAF, **A. HOFFMANN**, D. KARTASHOV, F. GÄRTNER, Z. SAMSONOVA, P. POLYNKIN, J. JACOBY, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Generation of multimillijoule redshifted beams for stimulated Raman scattering. In: GSI Scientific Report 2014, DOI 10.15120/GR-2015-1.
- C. EGELKAMP, V. HANNEN, H.-W. ORTJOHANN, J. VOLLBRECHT, CH. WEINHEIMER, D. WINZEN, B. LOMMEL, D. WINTERS, **A. HOFFMANN**, C. SPIELMANN: Detection system for forward emitted XUV photons from relativistic ion beams at ESR. In: GSI Scientific Report 2015, DOI 10.15120/GR-2016-1.
- B. LANDGRAF, F. GÄRTNER, D. KARTASHOV, **A. HOFFMANN**, Z. SAMSONOVA, G. VIEUX, G. MCKENDRICK, D. JAROSZYNSKI, J. JACOBY, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Technical report for P073, stimulated Raman Backscattering at PHELIX. In: GSI Scientific Report 2015, DOI 10.15120/GR-2016-1.

Z. SAMSONOVA, E. FÖRSTER, S. HÖFER, **A. HOFFMANN**, D. KARTASHOV, D. KHAGHANI, B. LANDGRAF, P. NEUMAYER, R. RÖDER, C. RONNING, O. ROSMEJ, C. SPIELMANN, L. TREFFLICH, I. USCHMANN, M. ZÜRCH: X-ray emission from laser-induced plasma with ZnO nanostructured targets. In: GSI Scientific Report 2015, DOI 10.15120/GR-2016-1.

B. LANDGRAF, G. LEHMANN, B. AURAND, **A. HOFFMANN**, T. GANGOLF, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Broadband Stimulated Raman Backscattering. In: Annual Report of the Helmholtz-Institute Jena 2016, DOI 10.15120/GSI-2017-00708.

S. ZÄTHER, A. SCHÖNLEIN, O. N. ROSMEJ, Z. SAMSONOVA, D. KHAGAHNI, C. ARDA, N. ANDREEV, **A. HOFFMANN**, S. HÖFER, M. KALUZA, D. KARTASHOV, L. PUGACHEV, I. USCHMANN, C. SPIELMANN: Generation of keV hot near solid density plasma at high contrast laser-matter-interaction. In: Annual Report of the Helmholtz-Institute Jena 2016, DOI 10.15120/GSI-2017-00708.

A. HOFFMANN, C. EGELKAMP, D. WINTERS, T. KÜHL, C. SPIELMANN: Online monitoring of XUV spectra from high-harmonic generation by surfacereflectivity measurements with particle detectors. In: Annual Report of the Helmholtz-Institute Jena 2016, DOI 10.15120/GSI-2017-00708.

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen:

1. Dr. Michael Zürich wertete die aufgenommenen Messdaten in Abschnitt 4.1.5 aus und führte die Kalibrierung des Photonenflusses durch.
2. Dr. Jozsef Seres wertete die aufgenommenen Messdaten in Abschnitt 4.1.7 aus.
3. Das Team um Dr. Carles Serrat (UPC Barcelona) führte die Simulationen im Abschnitt 4.1.7 durch.
4. Rudrakant Sollapur wertete die aufgenommenen Messdaten in Abschnitt 3.4.6 aus.
5. Dr. Volker Hannen, Daniel Winzen und Hans-Werner Ortjohann (WWU Münster) und Dr. Bettina Lommel (GSI Darmstadt) stellen die untersuchten Proben in Abschnitt 4.3.2 her.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- und Beratungsdiensten in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, den 26.04.2017